

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE TITRE DE DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ

PAR

Yves LE GALLIC

PREMIÈRE THÈSE

Mesure absolue de l'activité des émetteurs β au compteur 4 π

DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la faculté

Soutenues le 16 Juin 1959 devant la Commission d'Examen

MM. LAPORTE

Président

TEILLAC

BOUISSIÈRES

}

Examineurs

Série A, N° 877

N° d'ordre

901

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE TITRE DE DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ

PAR

Yves LE GALLIC

PREMIÈRE THÈSE

Mesure absolue de l'activité des émetteurs β au compteur 4 Π

DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la faculté

Soutenues le 16 Juin 1959 devant la Commission d'Examen

MM. LAPORTE

Président

TEILLAC

BOUSSIÈRES

} *Examineurs*

PROFESSEURS

DOYEN J. PERES

G. JULIA	T Analyse sup. & Algèbre sup.	NORMANT	T Chimie organique
FOCH	T Mécan. physique et expérimentale	BENARD	T Chimie (P. C. B.)
DE BROGLIE	T Théories physique	BUVAT	T Botanique (E. N. S.)
PRENANT	T Anatomie et Histol. comparées	DUGUE	T Statistiques mathém.
PERES	T Mécan. des Fluides et applications	GELOSO	T Chimie (S. P. C. N.)
M. CURIE	T Physique (S. P. C. N.)	SOULAIRAC	T Psychophysiologie
BARRABE	T Géol. struct. et Géol. appliquée	ULRICH	T Physiologie Végétale
J. BOURCART	T Géogr. physique et Géol. dynamique	MARECHAL	T Optique théorique et appliquée
PLANTEFOL	T Botanique	KIRRMANN	T Théories chimiques
GRASSE	T Evolution des êtres organisés	CHADEFAUD	T Botanique
PREVOST	T Chimie organique	DESTRIAU	T Physique (M. P. C.)
BOULIGAND	T Application de l'analyse à la Géométrie	Mlle LE BRETON	T Physiol. générale
CHAUDRON	T Chimie appliquée	SALEM	T Mathématiques Générales
WYART	T Minéralogie	LELONG	T Mathématiques Générales
TEISSIER	T Zoologie	DEVILLERS	T Anatomie et Histologie comparées
MANGENOT	T Biol. Végétale	EHRESMANN	T Topologie algébrique
P. AUGER	T Physique quantique et relativité	FRANCON	T Physique (S. P. C. N.)
MONNIER	T Physiol. générale	GLANGEAUD	T Géogr. physique et Géol. dynamique
PIVETEAU	T Paléontologie	GODEMENT	T Mathématiques (M. P. C.)
ROCARD	T Physique (E. N. S.)	PISOT	T Calcul des Probabilités
H. CARTAN	T Mathématiques (E. N. S.)	ROCH E.	T Géologie
LAFFITTE	T Chimie générale	SCHATZMANN	T Astrophysique
FAVARD	T Géométrie supérieure	TERMIER	T Paléontologie stratigraphique.
COULOMB	T Physique du Globe	ZAMANSKY	T Mathématiques Générales
Mlle COUSIN	T Biol. animale (S. P. C. N.)	LENNUIER	T Physique (M. G. P.)
CHRETIEN	T Chimie minérale	RIZET	T Génétique
P. DRACH	T Zoologie	ROUTHIER	T Géologie Appliquée
KASTLER	T Physique (E. N. S.)	Mme TONNELAT	T Phys. théor.
EPHRUSSI	T Génétique	DIXMIER	T Mathématiques (M. P. C.)
WURMSER	T Biologie physico-chimique	SOUCHAY	T Chimie générale
RIVIERE	T Géologie (S. P. C. N.)	AIGRAIN	T Electrotechnique
GAUTHERET	T Biol. végétale (P. C. B.)	BRUSSET	T Chimie minérale
LUCAS	T Recherches physiques	M. LEVY	T Physique théorique
A. THOMAS	T Biologie cellulaire	Mme CHAIX	T Chimie biologique
ARNULF	T Optique appliquée	Mme HUREL-PY	T Biol. Végétale (P. C. B.)
M. MORAND	T Enseignement de Physique	PIAUX	T Chimie (P. C. B.)
SOLEILLET	T Physique	BRUN	T Mécanique expérimentale des fluides
FORTIER	T Mécanique exper. des fluides	LEDERER	T Chimie des substances organiques naturelles
DANJON	T Astronomie	Mme DUBREIL	T Mathématiques
LAPORTE	T Physique générale et Radioactivité	Mme LE LONG	T Mathématiques (E. N. S.)
JANET	T Mécanique analytique et Mécanique céleste	BELLAIR	T Géologie (S. P. C. N.)
PETIT	T Biologie maritime	COTTE	T Physique (M. P. C.)
QUENEY	T Météorologie et dynamique atmosphérique	DUBOIS J. E.	T Chimie (S. P. C. N.)
GALLIEN	T Embryologie	LAMOTTE	T Zoologie (E. N. S.)
EICHHORN	T Biologie Végétale (S. P. C. N.)	MICHEL André	T Chimie (S. P. C. N.)
DE CUGNAC	T Biologie Végétale (S. P. C. N.)	OLMER	T Energétique Générale
Mlle CAUCHOIS	T Chimie Physique	ROUAULT	T Physique Générale
THELLIER	T Physique du Globe	GAUTHIER	T Méc. appliquée
L'HERITIER	T Génétique	BARCHEWITZ	T Chimie Physique
GRIVET	T Radioélectricité	BROSSEL	T Physique atomique
PONCIN	T Mécanique Générale	BUSER	T Biologie animale (P. C. B.)
DUBREIL	T Arithmétique et théorie des nombres	CAMUS	T Biol. Vég. (P. C. B.)
QUELET	T Chimie organique	CASTANG	T Physique Générale
CAGNIARD	T Géophysique appliquée	CURIEN	T Minéralogie et cristallographie
CHAMPETIER	T Chimie macromoléculaire	MOYSE	T Physiologie Végétale
CUVILLIER	T Géol. structurale et Géol. appliquée	NOIROT	T Evolution des êtres organisés
JUNG	T Pétrographie	PANNETIER	T Chimie (S. P. C. N.)
TRILLAT	T Microscopie et diffraction électronique	POSSOMPES	T Biologie Animale (P. C. B.)
WIEMANN	T Chimie organique et structurale	PULLMANN	T Chimie Théorique
JACQUINOT	T Spectroscopie et physique céleste	TEILLAC	T Physique Nucléaire et Radioactivité
VASSY	T Physique de l'Atmosphère	TONNELAT	T Biol. physico-chimique
DESTOUCHES	T Théories physiques	VILLE	T Econométrie
M. PRUVOST	T Géologie	WILLEMART	T Chimie (P. C. B.)
AMIEL	T Chimie générale (P. C. B.)	DODE	T Chimie
HOCART	T Minéralogie	FREYMANN	T Physique (S. P. C. N.)
J. P. MATHIEU	T Physique (P. C. B.)	GUINCHET	T Biol. Vég. (ORSAY)
COUTEAUX	T Biol. Animale (P. C. B.)	ROLLET	T Chimie (P. C. B.)
MAY	T Biol. Animale (P. C. B.)	Mlle JOSIEN	T Chimie (P. C. B.)
CHOQUET	T Calcul différentiel et Intégral	CHEVALLEY	T Géométrie Algébrique et théorie des groupes
FELDMANN	T Biologie (P. C. B.)	ARNOULT	T Physique (Orsay)
GUINIER	T Physique des solides	CHAPELLE	T Physique (Orsay)
JOST	T Physiol. comparée	DELANGE	T Mathématiques (Orsay)
FORTET	T Calcul des probabilités	DENY	T Mathématiques (Orsay)
SCHWARTZ	T Calcul différentiel et Intégral	GERMAIN P.	T Mécan. théor. des fluides.
CHOUARD	T Physiologie Végétale	LUCAS G.	T Géologie
MALAVARD	T Aviation		
BRELOT	T Calcul différentiel		



I

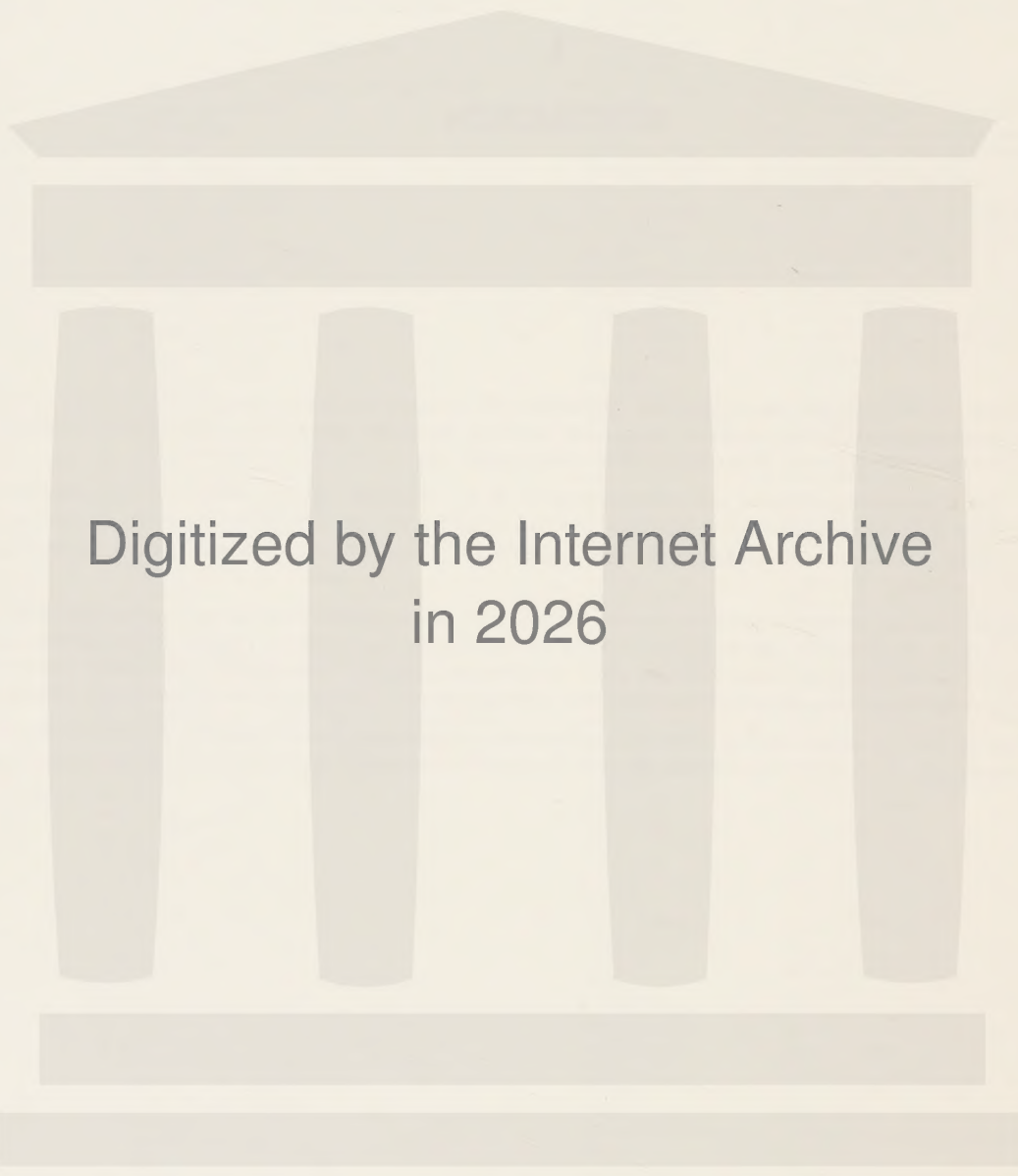
INTRODUCTION

On dispose actuellement de plusieurs méthodes de mesure de l'activité des radioéléments émetteurs β . Ces méthodes utilisées depuis plusieurs années dans de nombreux laboratoires peuvent être considérées comme classiques ; toutefois il faut remarquer que :

- les intercomparaisons internationales (U.S.A., Canada, G.B., France, etc.) laissent apparaître des divergences appréciables dans un certain nombre de cas ; ces divergences étant d'ailleurs moins importantes pour des radioéléments tels que ^{24}Na , ^{32}P ou ^{60}Co dont le schéma de désintégration est parfaitement connu.

D'autre part, étant donné l'importance considérable et les applications les plus diverses des radioéléments artificiels, le problème de la mesure β ne se pose plus de la même façon. Il est devenu impossible de se placer dans des conditions idéales pour la mesure, et par conséquent de nombreuses causes d'erreur viennent diminuer la précision de celle-ci, précision que l'on souhaiterait toujours plus grande.

Le but de ce travail est de rechercher les conditions permettant d'obtenir avec le maximum de précision, les mesures de l'activité des émetteurs β et par conséquent d'étudier les corrections qui s'y rapportent.



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41547118_0032

II

PRINCIPE DES DIFFÉRENTES MÉTHODES DE MESURE DES ÉMETTEURS β

Il s'agit de mesurer l'activité de la source β , c'est-à-dire de déterminer avec le maximum de précision possible le nombre N de transitions radioactives par unité de temps. Nous allons donc faire brièvement une étude critique des différentes méthodes de mesure de l'activité des émetteurs β .

Les méthodes principales sont les suivantes :

1 - CALORIMETRIE.

L'énergie cinétique du rayonnement émis par la source est absorbée et la quantité de chaleur dégagée est mesurée dans un microcalorimètre.

Cette méthode a l'avantage d'être indépendante de l'état physique de la source, en effet, le nombre de β émis par unité de temps, donc l'activité peut être déduite de la chaleur dégagée si l'on connaît le spectre de l'émission. Mais elle nécessite tout d'abord une source β assez intense (quelques curies environ), la connaissance exacte du spectre d'énergie des β émis et la proportion ainsi que l'énergie des électrons de conversion. D'autre part, la mesure des émetteurs β de faible énergie est très délicate car il faut opérer sur des sources très intenses.

Enfin la présence d'une faible quantité d'impuretés radioactives d'énergie supérieure à celle de la source à mesurer entraîne une erreur importante.

2 - METHODES DE NUMERATION.

a) Méthode des "coïncidences".

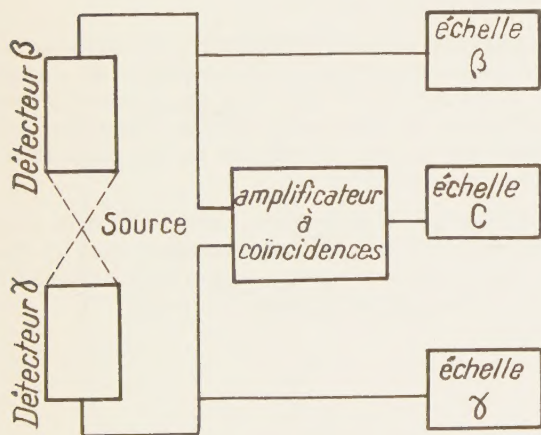


Figure 1 - Méthode des coïncidences.

- Elle n'est valable que pour les émetteurs β, γ ou $\gamma\gamma$.

- La source à mesurer est placée entre deux détecteurs spécifiques des rayonnements β et γ , c'est-à-dire que l'efficacité aux γ du détecteur β et l'efficacité aux β du détecteur γ sont pratiquement nulles.

- Ces deux détecteurs sont intégrés dans un circuit électronique qui permet d'enregistrer les impulsions en coïncidences (fig. 1).

Si l'on désigne par :

β - le nombre d'impulsions enregistrées au détecteur β ;

γ - le nombre d'impulsions enregistrées au détecteur γ ;

ϵ_{β} - l'efficacité β du détecteur β ;

ϵ_{γ} - l'efficacité γ du détecteur γ ;

C - le nombre de coïncidences $\beta\gamma$ enregistrées. On a :

$$N = \frac{\epsilon_{\beta} \cdot \beta \times \epsilon_{\gamma} \cdot \gamma}{\epsilon_{\beta} \epsilon_{\gamma} C} = \frac{\beta \times \gamma}{C}$$

Cette méthode comporte des limitations étroites, elle suppose en particulier la connaissance pré-

cise du schéma et des corrélations angulaires, or les émetteurs β , γ pour lesquels ces données sont parfaitement établies, sont en nombre très limité. La méthode des coïncidences n'est donc utilisable que dans un nombre très restreint de cas.

b) Angle solide défini [1].

La source à mesurer est placée face à la fenêtre d'un compteur cloche G. M. sur son axe (fig. 2).

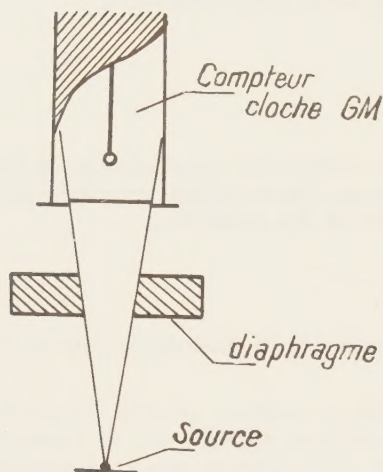


Figure 2 - Angle solide défini.

L'activité mesurée A_m et l'activité vraie A_v sont liées par la relation suivante :

$$A_m = G \cdot F_{rd} \cdot F_d \cdot F_r \cdot F_t \cdot A_v \text{ avec :}$$

$$G = \frac{\Omega}{4\pi} \text{ angle solide utile sous lequel le compteur est vu de la source.}$$

F_{rd} = facteur de rétrodiffusion.

F_d = facteur de diffusion.

F_r = facteur de réflexion sur les parois.

F_t = fraction transmise dans l'angle Ω , ce facteur correspond à l'absorption du rayonnement par l'ensemble air, fenêtre et gaz du compteur.

La détermination de ces différents facteurs est délicate, toutefois, l'utilisation d'un support de source de faible épaisseur et d'un diaphragme approprié permet d'éliminer rapidement les facteurs F_{rd} , F_d et F_r d'où $A_v = \frac{A_m}{G \cdot F_t}$.

La précision de G est surtout fonction de l'usinage du diaphragme, mais la correction la plus importante demeure la correction de fraction transmise, surtout dans le cas des émetteurs de faible énergie, cependant une détermination satisfaisante de celle-ci est possible [1].

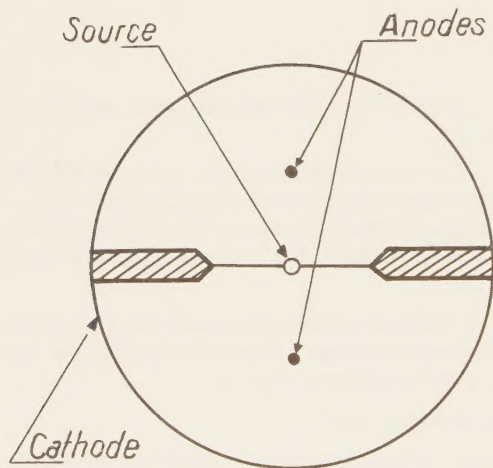


Figure 3 - Compteur 4π .

Néanmoins, cette méthode qui est de loin la plus simple, est difficilement utilisable pour les émetteurs β de faible énergie et est considérablement entachée d'erreur dans le cas d'un radioélément contenant un entraîneur.

c) Compteur 4π .

Cette méthode permet d'éliminer les principales causes de correction et évite la détermination de l'angle solide utile. Tous les rayons émis en 4π stéradians sont comptés. En outre, on ne compte qu'une impulsion par désintégration quel que soit le schéma de désintégration, ce qui est très important.

En raison de son universalité, cette méthode s'est imposée comme une méthode fondamentale dont il importe d'examiner tous les aspects afin d'en améliorer la précision, ceci fait l'objet du présent travail.

III

MESURE DU TAUX DE DÉSINTÉGRATION

1 - COMPARAISON DES 4π GM ET PROPORTIONNEL

On utilise actuellement deux types de compteur 4π : les compteurs 4π fonctionnant en régime proportionnel et les compteurs 4π fonctionnant en régime Geiger-Müller. Pour ces deux types de compteurs, l'activité de la source est donnée par la relation :

$$N_{\text{vrai}} = (N_1 + N_2) - (C + MP)$$

Dans cette relation :

- N_{vrai} - représente le taux de désintégration vrai de la source ;
- N_1 et N_2 - les impulsions enregistrées dans les deux moitiés du compteur ;
- C - le nombre de coïncidences produites entre ces deux voies ;
- MP - le mouvement propre.

Nous avons comparé ces deux types de compteur 4π et essayé de faire un choix en tenant compte de leurs qualités et inconvénients respectifs.

Principe de fonctionnement et description.

Les compteurs 4π se composent essentiellement de deux compteurs 2π de forme très variable (demi-cylindriques, demi-sphériques, etc.), réunis par le système porte source. Ce dispositif permet d'éliminer un grand nombre d'erreurs inhérentes aux autres méthodes de mesure absolue.

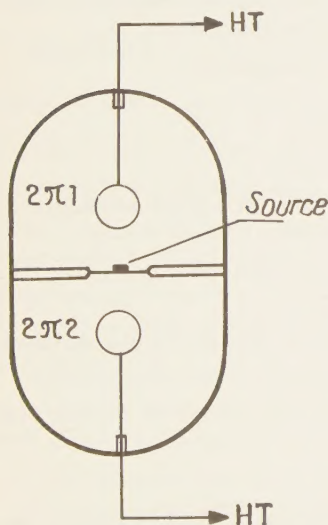


Figure 4 - 4π proportionnel.

Tout d'abord, l'angle solide est parfaitement bien défini, puisqu'il est égal à une très bonne approximation près à 4π stéradians pour une source placée dans le plan d'intersection de ces deux compteurs.

D'autre part, quel que soit le schéma de désintégration radioactive de la solution à mesurer (β^- , β^+ , γ , électrons de conversion), on ne compte qu'une seule impulsion par désintégration.

Une seule exception, les radioéléments se désintégrant par capture électronique dont l'étude n'est pas comprise dans notre travail.

Enfin, les phénomènes de diffusion et de réflexion n'interviennent plus dans la mesure puisque la source est placée à l'intérieur du compteur. Les deux types de compteur 4π se différencient par la région dans laquelle ils fonctionnent.

a) Compteur 4π proportionnel

Ce type de compteur est généralement constitué par deux compteurs 2π , demi-sphériques séparés par un diaphragme d'aluminium, sur lequel on place la source à mesurer (fig. 11).

Les deux anodes sont constituées par des boucles de 2 cm de diamètre en fil de tungstène de 0,02 mm de diamètre.

Ces compteurs sont à circulation gazeuse (Flow-counter), le gaz généralement utilisé étant du méthane, ou bien un mélange argon-méthane à 10 pour cent. Un avantage certain de ces comp-

teurs sur ceux à remplissage, est de ne pas nécessiter un vide préliminaire et par suite d'éviter tous les inconvénients que la technique du vide entraîne inmanquablement.

Toutefois, il faut noter qu'un balayage de 30 à 40 mn est nécessaire avant de pouvoir commencer la mesure.

La grandeur des impulsions recueillies sur les anodes est proportionnelle au nombre d'ions libérés dans le gaz de circulation par le passage de la particule β . Le facteur de multiplication étant de l'ordre de 10^4 .

L'impulsion délivrée par le compteur doit pour déclencher l'échelle, être d'abord amplifiée par un amplificateur (gain 10 000), l'échelle doit en outre être précédée d'un discriminateur permettant d'éliminer le bruit de fond.

La tension de fonctionnement des 4π proportionnel varie de 2 000 à 5 000 V suivant les types de compteur et le gaz de remplissage.

b) Compteur 4π . Geiger-Müller.

Ces compteurs et en particulier ceux que nous avons utilisés sont généralement constitués par deux demi-cylindres en laiton (fig. 12) ; la source étant placée sur la cloison de séparation à mi-hauteur.

Les anodes sont en tungstène de 0,05 mm de diamètre et leur longueur est d'environ 20 cm.

Le remplissage est généralement effectué après un vide préliminaire de l'ordre de 10^{-4} mm, avec un mélange d'argon (7 cm) et d'alcool (1 cm), nous reviendrons d'ailleurs sur ce point dans la suite de notre étude.

Le compteur que nous avons utilisé est muni d'un sas d'entrée permettant d'introduire la source ou de l'extraire sans qu'il soit nécessaire à chaque opération de procéder à un nouveau remplissage. La perte de gaz à chaque introduction ne dépasse pas 1/1 000 du volume du compteur. Il est possible dans ces conditions d'effectuer environ 200 mesures par remplissage.

Les impulsions délivrées par le compteur 4π GM sont toutes sensiblement de même hauteur, et leur grandeur est suffisante pour déclencher une échelle. Ceci simplifie considérablement le dispositif électronique associé qui se compose pour chaque demi-compteur d'un préamplificateur et d'une échelle.

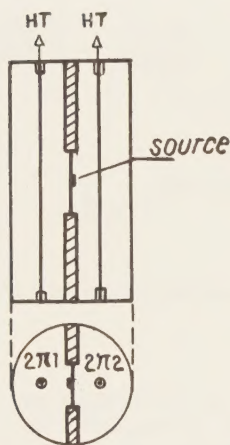


Figure 5 - 4π GM.

Etude du fonctionnement des deux types de compteur 4π .

La comparaison des deux types de compteur 4π nous a conduit à séparer en plusieurs parties l'étude de leur fonctionnement.

- a) Efficacité ou plus exactement probabilité de réponse des compteurs.
- b) Fonctionnement électronique.
- c) Rôle des paliers dans la détermination de l'activité.
- a) Efficacité.

Pour que l'efficacité d'un compteur 4π soit égale à 1, c'est-à-dire qu'à toute particule β émise dans le volume sensible, corresponde une impulsion comptée par l'échelle, il faut :

premièrement : que la probabilité qu'à un nombre x (ionisation minimum) de paires d'ions, de donner naissance à une impulsion, soit égale à 1 ;

deuxièmement : que la probabilité de création de ces x paires d'ions, par particule incidente, soit elle aussi égale à 1.

Nous allons étudier successivement ces deux probabilités, dans les mesures en GM et en proportionnel.

1/ Efficacité du 4π proportionnel.

L'ionisation nécessaire dépend du coefficient de multiplication du gaz et de la capacité du compteur, c'est pourquoi les auteurs ne sont pas toujours d'accord sur la valeur à attribuer à ce nombre x : Hawkins [3] = 10 paires, Seliger et Cavallo [4] = 12 paires, Séliger et Schwebel [5] = 6 paires, Yaffe [6] = 1 à 6 paires.

De plus, ce type de compteur est très sensible à la pureté du gaz (Yaffe [6]), et comme il ne faut

pas négliger une variation même légère du bruit de fond de l'amplificateur, nous pensons qu'il faut admettre pour ionisation minimum un nombre $\underline{x}$ égal à 10 paires d'ions.

Cette ionisation minimum correspond à une perte d'énergie de 350 eV, ce qui revient à dire que les particules β dont l'énergie est inférieure à 350 eV ne seront pas comptées. Si l'on examine maintenant les spectres des différents nuclides, mesurés d'une façon courante, nous voyons que la proportion du nombre de particules β d'énergie inférieure à 350 eV, au nombre total des particules émises est tout à fait négligeable pour des émetteurs tels que ^{32}P , ^{198}Au , ^{24}Na , ^{90}Sr ; mais que cette proportion est appréciable pour les émetteurs de faible énergie :

0,4 pour cent environ pour le ^{35}S d'énergie maximum 0,169 MeV,

0,6 pour cent environ pour le ^{14}C d'énergie maximum 0,155 MeV.

Par ailleurs, la probabilité de création de ces 10 paires d'ions par particule β émise, est diminuée sensiblement lorsque l'on utilise comme support de sources des films non conducteurs. En effet, dans la zone immédiatement voisine de la source, le champ de collection des ions positifs est faible, les électrons libres se déplacent lentement et la probabilité de recombinaison devient très grande. Enfin et ceci est important, il est nécessaire que l'ionisation primaire minimum soit produite en dehors de cette zone de moindre efficacité.

2/ Efficacité du 4π Geiger.

Une paire d'ions suffit à provoquer l'avalanche électronique et par la même à donner naissance à une impulsion.

Pour être assuré que chaque β émis crée une paire d'ions dans la zone sensible, il est nécessaire que la distance source-extrémité des anodes soit suffisante (de l'ordre de 40 mm).

D'autre part, si l'utilisation de films supports de source non conducteur, provoque également une perturbation dans le fonctionnement du compteur, celle-ci sera moins grande, puisqu'il suffit d'une paire d'ions créée à l'extérieur de la zone de moindre efficacité pour que chaque β émis soit compté.

3/ Conclusion.

Cette comparaison des probabilités de réponse des deux types de compteur 4π nous montre que :

- dans le cas des émetteurs de faible énergie une correction d'efficacité est indispensable avec les 4π proportionnels, cette correction étant par ailleurs très délicate,

- l'utilisation de films conducteurs semble plus nécessaire, au compteur 4π proportionnel qu'au compteur 4π GM.

b) Fonctionnement électronique.

1/ 4π proportionnel.

α) Variations de l'activité mesurée en fonction des différents paramètres.

Haute tension - gain - discrimination.

Courbes n° 3 A et 4 A - source de ^{32}P énergie maximum : 1,7 MeV.

Courbes n° 4 A et 4 B - source de ^{35}S énergie maximum : 0,169 MeV.

Pour la source de ^{32}P , nous avons une valeur constante de l'activité mesurée pour les amplifications comprises entre 1 000 et 8 000 et les discriminations comprises entre 1 et 3 V.

Pour la source de ^{35}S , nous avons une valeur constante de l'activité mesurée pour les amplifications comprises entre 2 000 et 8 000 et pour les discriminations comprises entre 1 et 2 V.

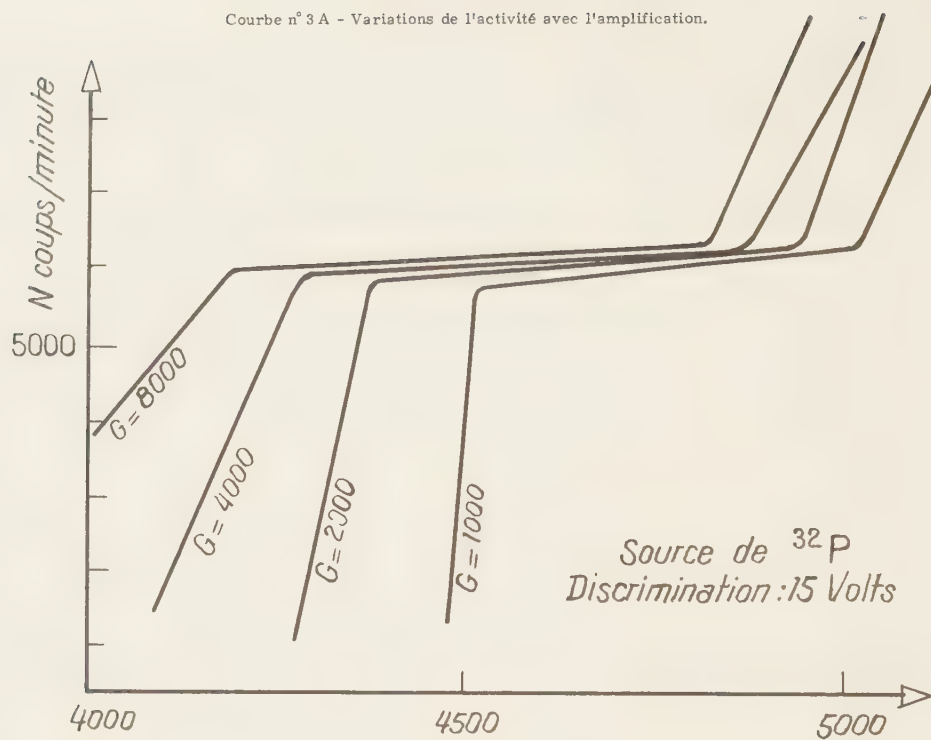
β) Influence de la nature des gaz de remplissage.

Les gaz étudiés ont été :

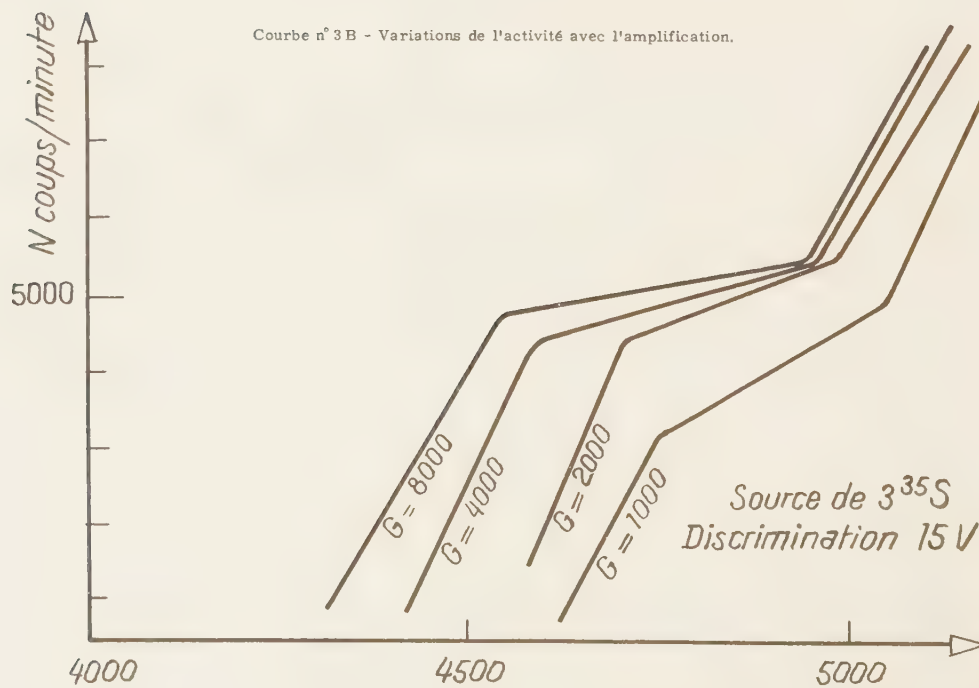
- méthane pur et méthane technique,
- mélange argon-méthane à 10 pour cent d'argon,
- mélange hélium isobutane.

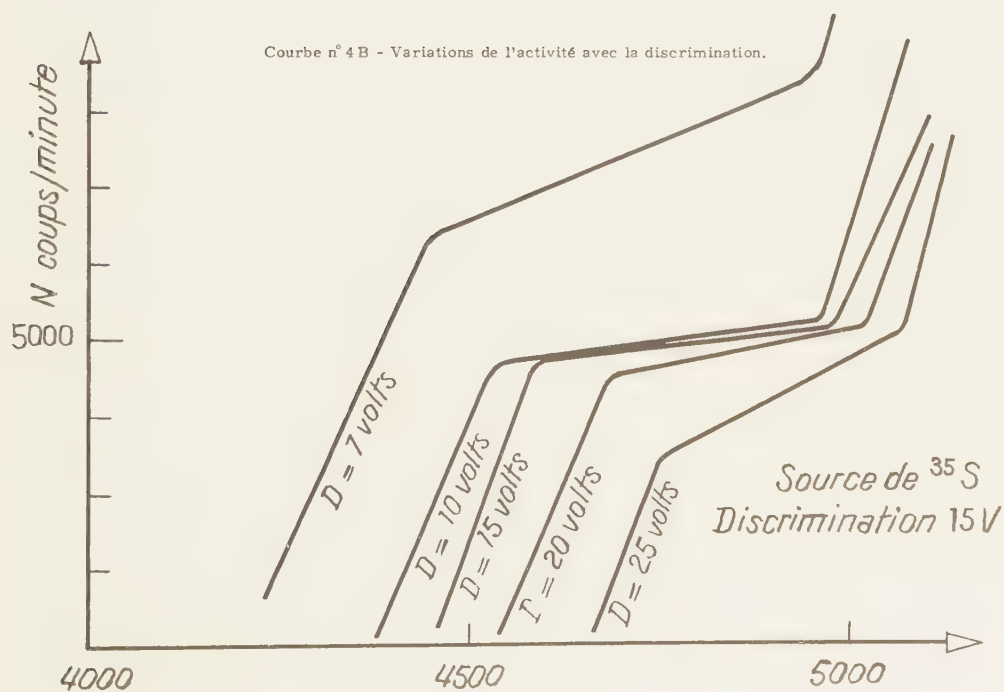
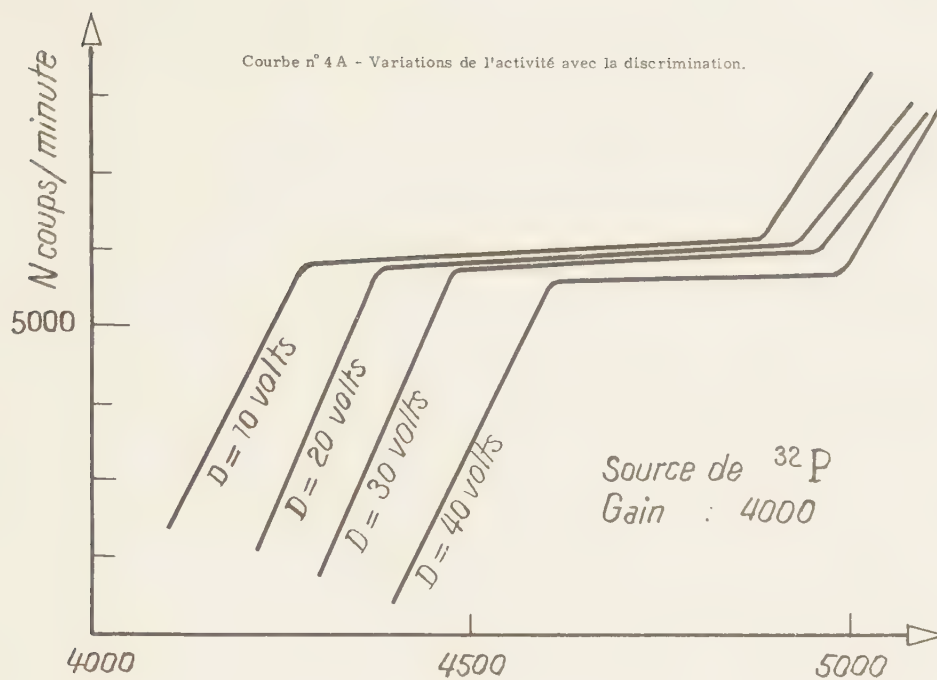
Le méthane a donné les meilleurs résultats (longueur et pente des paliers, reproductibilité d'un balayage à l'autre). D'autre part, la comparaison des résultats obtenus avec le méthane purifié de provenance américaine, et le méthane commercial de St-Gaudens n'a pas fait apparaître dans ces domaines des différences appréciables. C'est pourquoi nous avons adopté ce dernier.

Courbe n° 3 A - Variations de l'activité avec l'amplification.



Courbe n° 3 B - Variations de l'activité avec l'amplification.





γ) Temps mort - pertes de comptage.

Le temps de résolution est de l'ordre de $2 \mu\text{s}$, les pertes de comptage sont donc négligeables dans la plupart des cas (1 pour cent pour un taux de comptage de 100 000 c/m). Ce faible temps de résolution permet des taux de comptage élevés et par conséquent de réduire l'erreur statistique.

2/ Compteur 4π GM

α) Etude du mélange de remplissage.

Les mesures d'activité avec un compteur 4π GM, exigent pour être précises, des paliers ayant une pente très voisine de 0 % pour 100 V, car, il est bien établi que celle-ci est due à des processus secondaires (coups multiples ou autres).

Ceci suppose naturellement que le compteur fonctionne bien dans la zone Geiger-Müller et non dans une région de semi-proportionnalité, qui permettrait d'expliquer la pente positive des paliers par une efficacité inférieure à l'unité.

Le fonctionnement correct d'un compteur 4π GM repose donc sur deux critères ; à savoir :

- fonctionnement en régime Geiger,
- pente des paliers voisine de 0 pour cent pour 100 V.

Rappelons le principe de fonctionnement de ces compteurs, tel qu'il est généralement admis.

Une particule ionisante traverse le compteur et libère un certain nombre de paires d'ions sur sa trajectoire. Les électrons négatifs se dirigent rapidement vers l'anode et provoquent l'avalanche de Townsend, les ions positifs vont beaucoup plus lentement à la masse.

Les processus secondaires seraient les suivants :

1/ les atomes excités par le passage de la particule se dés excitent en émettant un photon. Ces photons s'ils arrivent à la coque, peuvent arracher des électrons au métal et produire une impulsion secondaire,

2/ si des ions positifs non excités frappent la coque, il y aura très probablement émission d'électrons secondaires. Par contre, si les ions positifs qui arrivent à la masse sont excités ils attireront un électron qui neutralisera l'ion en laissant la molécule en état excité.

Pour supprimer le premier de ces effets, il faut empêcher l'arrivée des photons sur la coque, on y parvient en utilisant un gaz autocoupeur ayant une molécule polyatomique (ex. : alcool) et qui a par conséquent une très grande probabilité d'être ionisée par les photons.

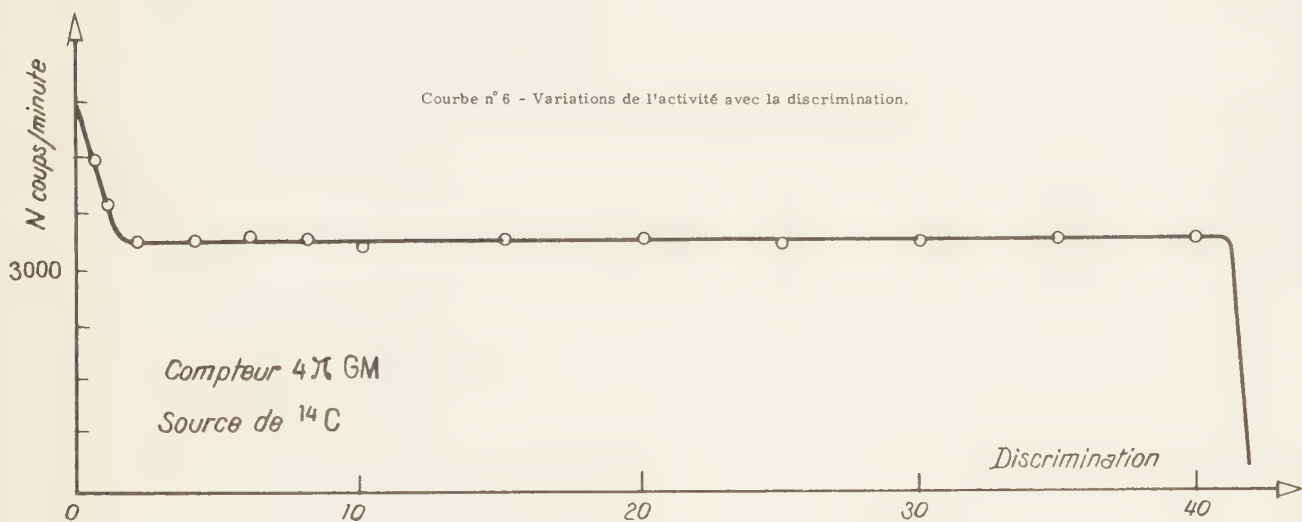
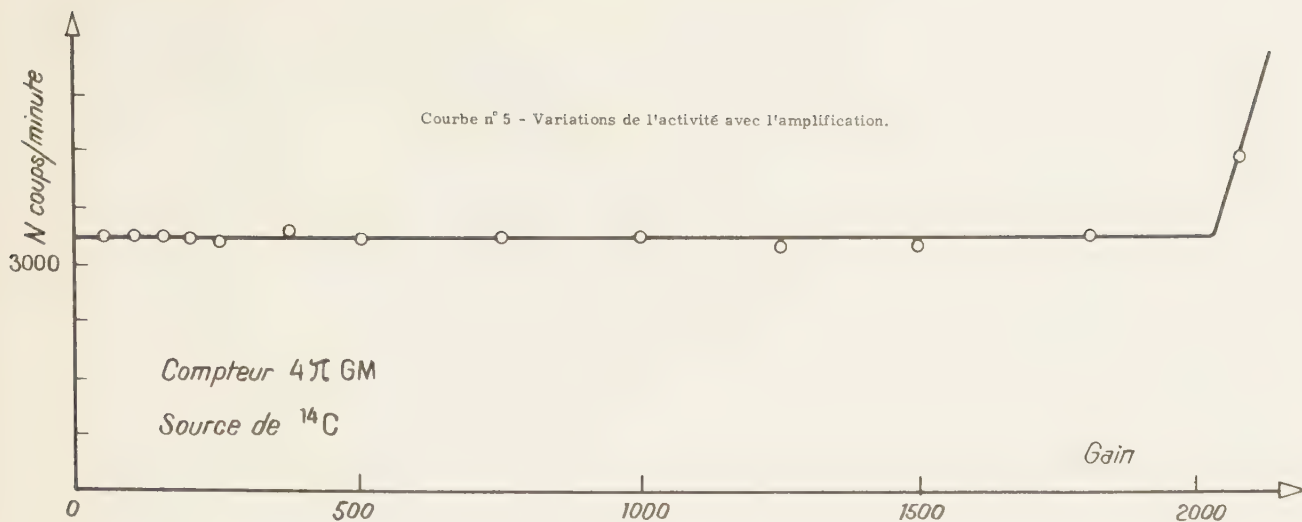
Nous venons de remarquer que si des ions positifs non excités frappent la coque du compteur, il y aura formation d'électrons secondaires. Or, dans les mélanges de remplissage classiques (argon + alcool par exemple) la gaine d'ions positifs est à l'origine constituée d'ions d'argon et d'ions d'alcool.

L'argon étant un gaz monoatomique, ses ions ont très peu de chance d'absorber un photon et n'étant pas excités, ils émettront un électron secondaire. C'est dans ce processus qu'intervient à nouveau la molécule polyatomique. D'une part, les ions positifs d'alcool qui eux sont excités, se neutraliseront en arrachant un électron à la coque du compteur. D'autre part, si un ion d'argon rencontre une molécule d'alcool, il y a une forte probabilité pour qu'un électron passe de la molécule d'alcool sur l'ion d'argon. Par suite, à l'arrivée sur la coque, la gaine positive sera pratiquement composée d'ions d'alcool.

C'est pourquoi on a intérêt à ajouter à l'argon un gaz dont la molécule comprend le plus grand nombre possible d'atomes.

Le mélange de remplissage généralement utilisé est l'argon (80 à 90 pour cent) + alcool éthylique (10 à 20 pour cent) à une pression totale de 8 à 12 cm. Nous avons utilisé ce mélange en remplissant notre compteur avec 1 cm d'alcool + 7 cm d'argon, et nous avons vérifié que nous fonctionnions bien en régime Geiger : pour cette vérification, l'examen des impulsions de sortie à l'oscillographe ne semblant pas suffisant, nous avons associé au dispositif de comptage un amplificateur linéaire (gain variable de 0 à 2 000) et un discriminateur 2 MHz. Nous avons tracé pour une tension fixe les courbes de l'activité en fonction du gain (courbe n° 5) et de la discrimination (courbe n° 6). Ces deux courbes montrent que le nombre d'impulsions enregistrées est indépendant de l'amplification même avec une source aussi peu énergétique que le ^{14}C avec lequel cette étude a été faite. Il est également indépendant de la valeur du seuil de discrimination tant que celui-ci est inférieur à une valeur fixe qui correspond à la hauteur des impulsions (4 V).

Quoique ces résultats soient satisfaisants, ce mélange présente néanmoins un certain nombre d'inconvénients.



- L'alcool se trouve sous forme de vapeur dans le mélange de remplissage et les variations de température peuvent provoquer des condensations sur les parois du compteur.

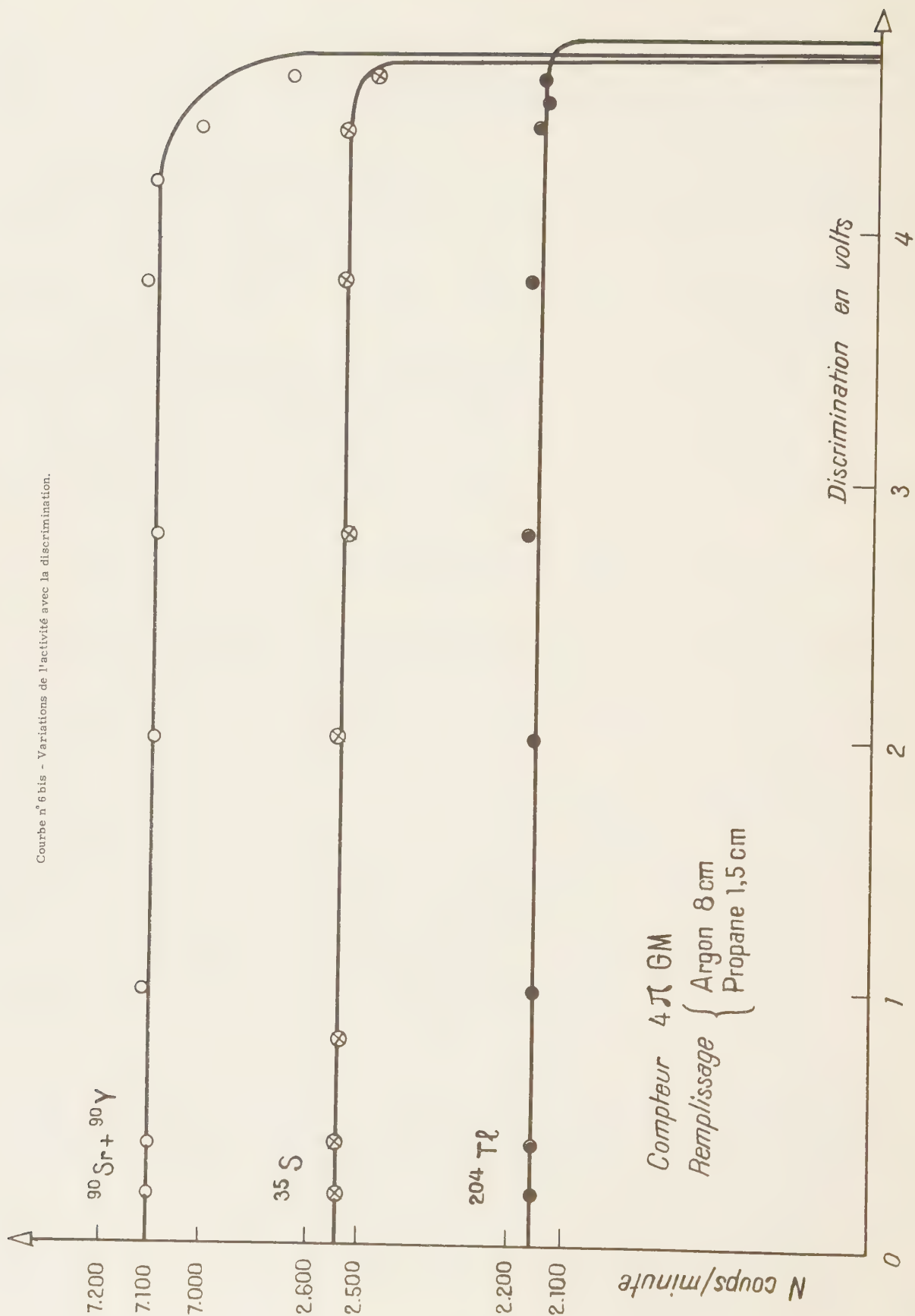
- L'alcool absorbe très facilement des traces d'eau ; celles-ci perturbent sensiblement le fonctionnement du compteur, il est donc nécessaire d'utiliser un alcool très pur totalement exempt d'eau.

- L'alcool étant liquide à la pression atmosphérique, il ne peut donc être utilisé qu'à faible pression.

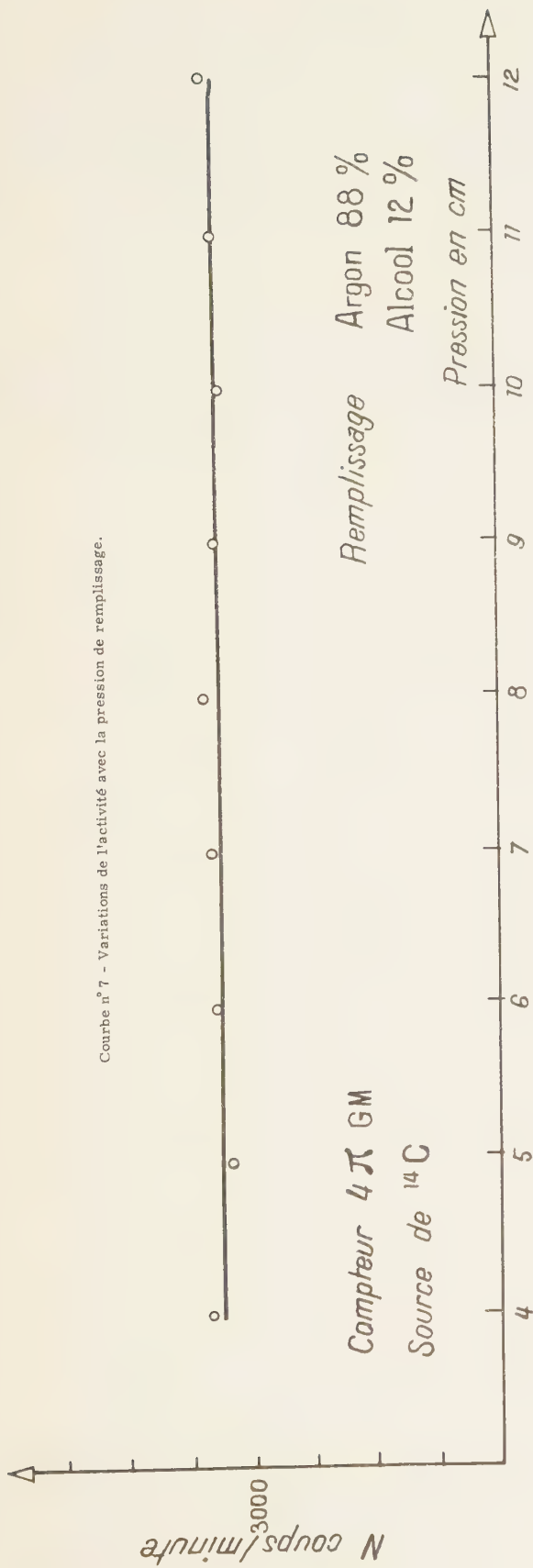
Si l'on suppose que l'efficacité de l'alcool est lié au nombre d'atomes constitutifs, on peut raisonnablement supposer que les alcools secondaires (alcool propylique $\text{CH}_3\text{CH}_2\text{CHOH}$, alcool butylique $\text{CH}_3\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CHOH}$) ou les alcools tertiaires (alcool isobutylique $\text{CH}_3\text{CH}_2\text{CH}(\text{OH})\text{CH}_3$) conviendront mieux encore au fonctionnement du compteur. Si cette hypothèse est fondée, on est également en droit de penser qu'une molécule de carbure saturé sera aussi efficace que celle de l'alcool correspondant, dont elle ne diffère que par un atome d'oxygène.

Aussi avons-nous orienté nos recherches sur les mélanges de remplissage argon + carbure saturé.

Différents mélanges ont été testés en conservant une pression globale de 9,5 cm et un pourcentage en volume de $\frac{8}{9,5} = 84$ pour cent pour l'argon.



Courbe n° 7 - Variations de l'activité avec la pression de remplissage.



Courbe n° 8 - Variations du seuil avec la pression de remplissage.



- Méthane. CH_4 ou HCH_3 , les essais se sont révélés négatifs.

- Ethane. C_2H_6 ou CH_3CH_3 , le prix de revient et les difficultés d'approvisionnement rendent ce gaz peu utilisable.

- Propane. C_3H_8 ou $\text{CH}_3\text{CH}_2\text{CH}_3$, gaz commercial peu onéreux et ayant un degré de pureté très satisfaisant. Avec le mélange de remplissage argon-propane, nous avons obtenu d'excellents résultats (courbe n° 6 bis) : de plus, un pompage primaire très bref suffit pour effectuer un remplissage correct, ce qui permet d'éliminer les installations à vide poussé, onéreuses et de fonctionnement assez délicat.

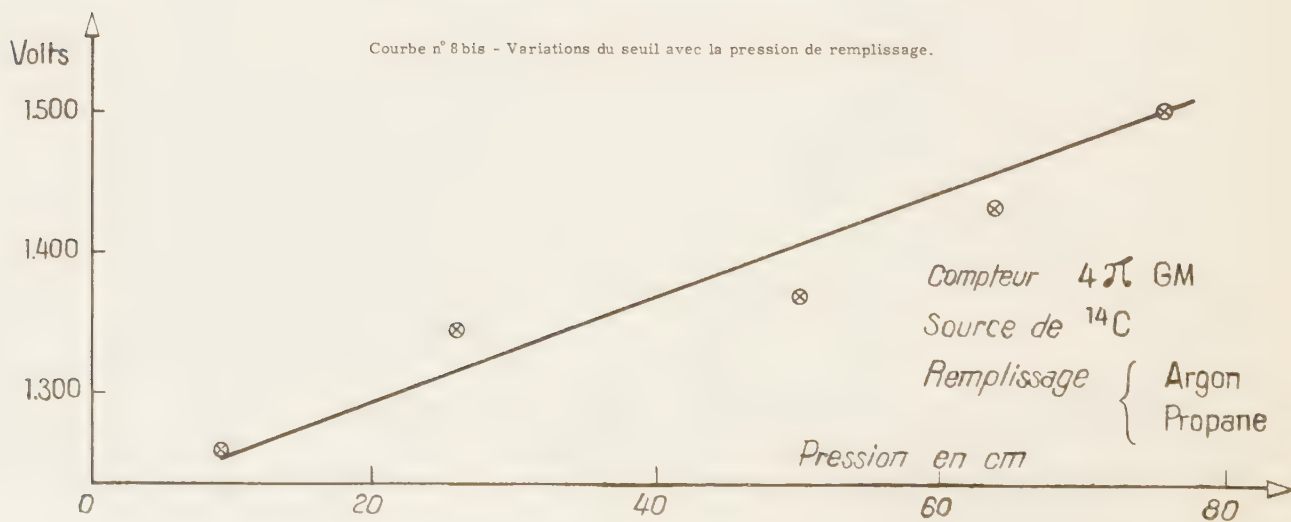
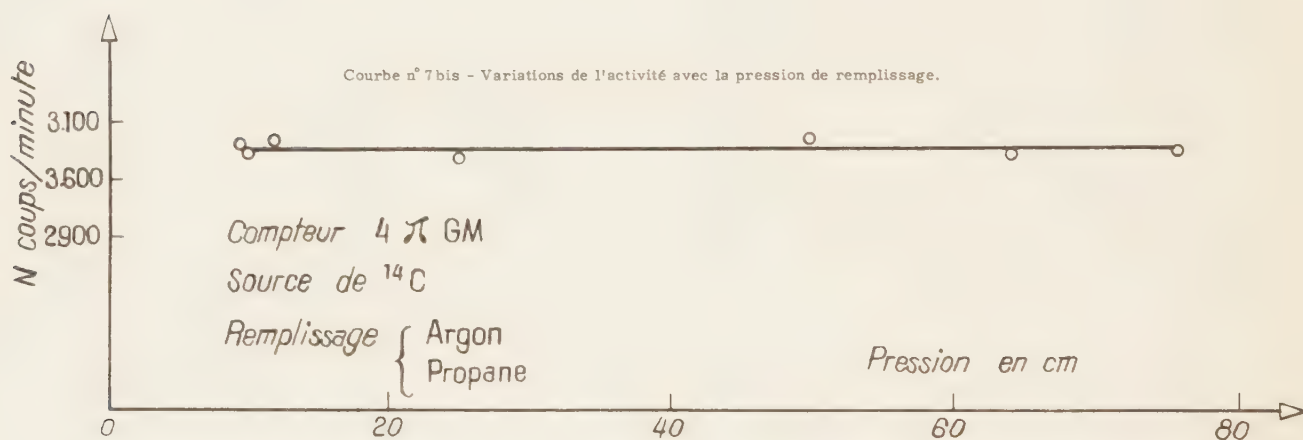
- Butane. C_4H_{10} ou $\text{CH}_3\text{-CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_3$, peu onéreux, mais le butane commercial, comprend un certain nombre d'impuretés nuisibles au bon fonctionnement du compteur.

β) Influence de la pression de remplissage.

- mélange argon-alcool.

Nous avons fait varier la pression totale de remplissage de 4 à 12 cm (courbe n° 7) et nous avons constaté que la valeur mesurée d'un étalon de ^{14}C ne variait pas. Par contre (courbe n° 8) le seuil varie très sensiblement, mais ce fait ne présente pas d'inconvénient.

La valeur de la pression finalement retenue est de 8 cm (7 cm argon + 1 cm alcool éthylique).



- mélange argon-propane.

Nous avons fait varier la pression totale de remplissage de 8 à 76 cm (courbe n° 7 bis) et nous avons constaté que la valeur mesurée de l'étalon de ^{14}C ne variait pas. Par contre, si le seuil de comptage ne varie pas considérablement avec la pression totale du remplissage (courbe n° 8 bis), il dépend considérablement de la proportion de propane dans le mélange (courbe n° 16).

En définitive, nous avons retenu deux mélanges de remplissage :

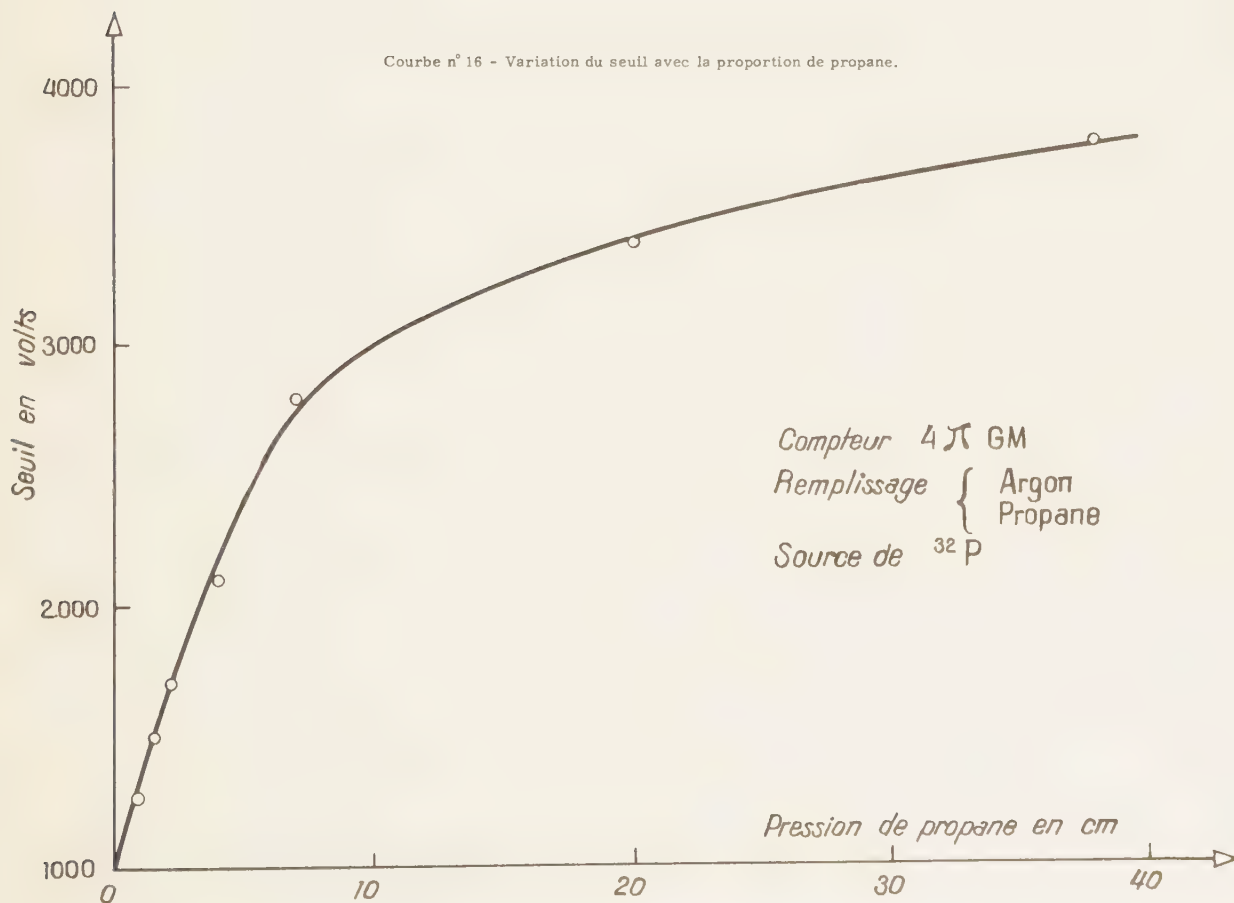
a) pression totale 9,5 cm $\left\{ \begin{array}{l} 1,5 \text{ cm propane} \\ 8 \text{ cm argon} \end{array} \right.$

b) pression totale 76 cm $\left\{ \begin{array}{l} 1,5 \text{ cm propane} \\ 74,5 \text{ cm argon} \end{array} \right.$

γ) Temps mort - Pertes de comptage.

Les compteurs 4π GM ont un temps mort assez important qui varie avec la surtension appliquée sur l'anode. La détermination précise de ce temps mort qui est nécessaire pour évaluer les pertes de comptage est très délicate. Aussi avons-nous imposé à l'ensemble de comptage un temps mort supérieur au temps mort propre du compteur.

Remplissage	Temps mort du compteur	Temps mort imposé minimum
argon-alcool 8 cm	350 μs	400 μs
argon-propane 9,5 cm	400 μs	600 μs
argon-propane 76 cm	800 μs	1 000 μs



Ces temps morts ont été mesurés d'une part à l'oscillographe, d'autre part déduits des courbes de décroissance de ^{128}I (période : 25 mn) et de ^{116}In de période : 54 mn. Les deux méthodes ont donné des résultats identiques.

Δ) Variation de la pente des paliers avec les remplissages.

La courbe n° 17 montre les paliers obtenus avec les remplissages étudiés. Tous les trois ont une pente nulle mais la longueur est plus grande avec les mélanges argon-propane. Nous avons donc adopté ce mélange en accordant notre préférence aux remplissages à 9,5 cm en raison du temps mort propre du compteur (400 μs au lieu de 800 μs à la pression atmosphérique).

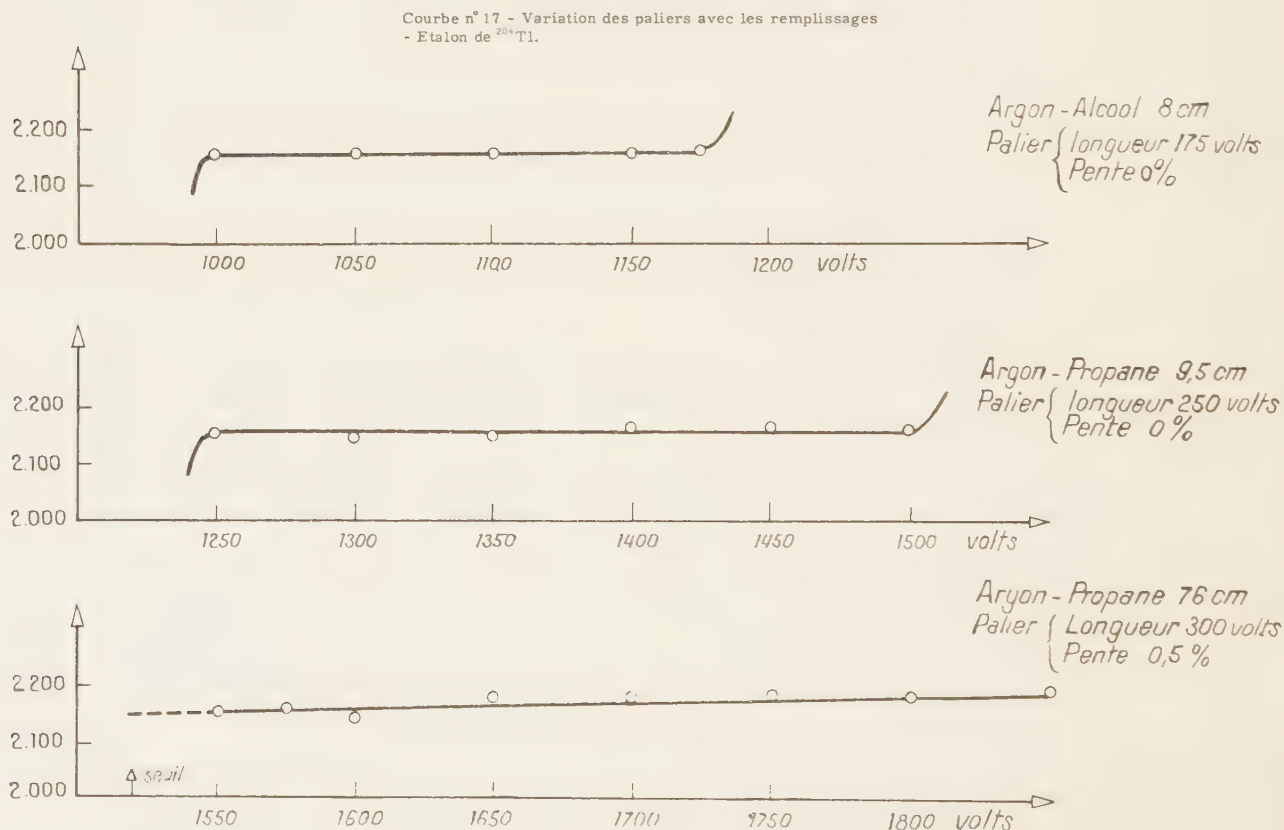
c) Détermination de l'activité.

L'activité de la source à mesurer est déduite de la courbe caractéristique du compteur (variations de l'activité mesurée en fonction de la tension appliquée sur les anodes). Le problème fondamental est de déterminer le point de cette courbe pour lequel le rapport : nombre d'impulsions enregistrées/nombre de particules β émises, soit égal à 1.

- 4 π proportionnel.

Les auteurs sont d'accord pour reconnaître que les paliers des compteurs 4 π proportionnels ont une longueur de 600 à 800 V et une pente très faible de 0,2 à 0,4 pour cent pour 100 V.

L'expérience nous a montré qu'effectivement la pente des paliers obtenus avec le 4 π proportionnel n'était pas très importante - 0,2 à 0,4 pour cent pour 100 V, mais étant donné la longueur du palier (800 V), l'incertitude quant à la détermination de l'activité devient de l'ordre de 2 à 4 pour cent entre les points extrêmes. Certains auteurs recommandent d'effectuer les mesures à 160 V au-dessus du seuil ; ce choix qui est sans doute justifié pour le compteur avec lequel cette étude a été faite n'est certainement



pas généralisable à tous les compteurs proportionnels. La courbe n° 9 montre le palier d'une source étalon de ^{14}C obtenu au 4π proportionnel.

- 4π GM.

Les paliers des compteurs 4π GM sont beaucoup plus courts que ceux des 4π proportionnels, mais ils présentent l'avantage d'avoir une pente voisine de 0 pour cent.

Les paliers obtenus avec le 4π GM - CEA, varient de 150 à 300 V et leur pente est couramment de 0 pour cent. La courbe n° 9 montre le palier obtenu avec l'étalon de ^{14}C après un mois de fonctionnement continu.

d) Etude du mouvement propre.

- 4π proportionnel.

Son mouvement propre n'est pas très important, 200 c/m environ, mais il est très variable et très sensible à la présence de poussières à l'intérieur du compteur. Nous avons constaté en cours de mesure dans une même journée, une variation du mouvement propre de 200 à 500 c/m.

- 4π GM.

Le palier du mouvement propre du compteur 4π GM présente lui-même une pente faible (0 à 1 pour cent), sa valeur ne varie pas dans le temps (sauf en cas de contamination) et elle égale à $130 \text{ c/m} \pm 10$.

Résultats expérimentaux.

Avant de conclure cette comparaison des deux types de compteur 4π , nous avons mesuré trois solutions étalons de ^{32}P , ^{24}Na et ^{35}S aux deux compteurs. Les résultats reportés dans le tableau n° 6 représentent la moyenne sur un nombre important de sources.

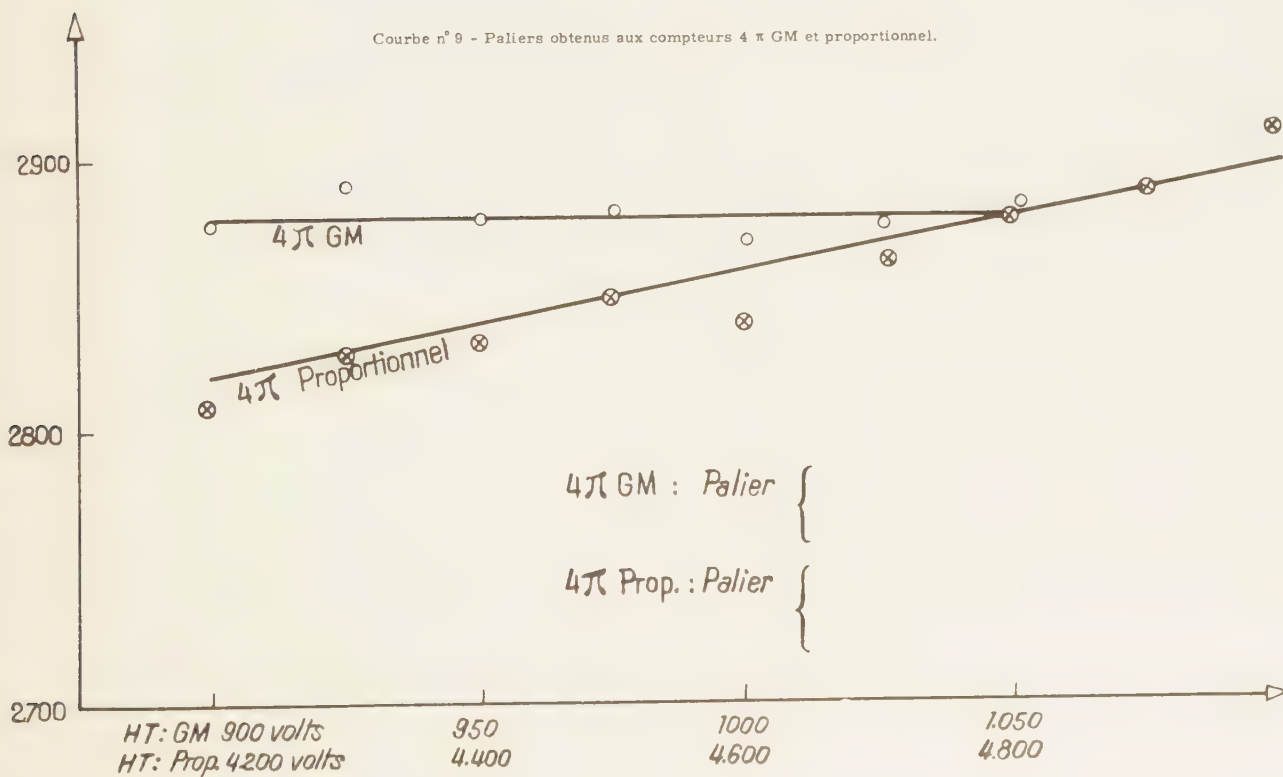


Tableau n° VI

Radioélément	Energie	4 π GM	4 π prop.	Différence GM - Prop. GM
^{32}P	1,7 MeV	9,19 c/g	9,14 c/g	+ 0,55 %
^{32}P	1,7 MeV	9,185 c/g	9,165 c/g	+ 0,2 %
^{24}Na	1,4 MeV	3,56 "	3,48 "	+ 2,3 %
^{24}Na	1,4 MeV	3,57 "	3,52 "	+ 1,5 %
^{35}S	0,169 MeV	3,81 "	3,65 "	+ 4,2 %

Cette différence sensible paraît surprenante, toutefois, les intercomparaisons faites entre le NBS et le NPL dont les résultats (tableau n° VII) figurent dans l'article de Seliger et Schwebel [8], confirment l'existence de cette différence systématique, les résultats du 4 π proportionnel étant toujours inférieurs à ceux du 4 π GM.

Tableau n° VII

Radioélément	Energie en MeV	Date	4 π GM $\mu\text{c/g}$	4 π prop. $\mu\text{c/g}$	Différence GM - Prop. GM
$^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$	0,5 - 2,18	27. 4. 53	11,44	11,27	+ 1,5 %
^{198}Au	0,96	20. 5. 55	25,2	24,9	+ 1,2 %
^{60}Co	0,31	7. 5. 52	0,795	0,773	+ 2,75 %
^{131}I	0,3 - 0,6 - 0,8	15. 1. 53	251	239	+ 4,8 %

Conclusion.

Les diverses comparaisons dont il vient d'être parlé montrent :

- que l'inconvénient majeur du compteur 4 π GM est l'importance de son temps mort, mais cet inconvénient est largement compensé par la simplicité de son équipement électronique, sa probabilité de réponse égale à 1 quelle que soit l'énergie de l'émetteur β , la faible pente de ses paliers et la constance de son mouvement propre,

- que par contre, le compteur 4 π proportionnel ne nécessite pas l'utilisation d'un banc à vide et présente un temps de résolution très faible. En dépit de ceci, il présente de nombreux inconvénients : lourdeur de son équipement électronique, efficacité inférieure à 1 pour les émetteurs β de faible énergie, incertitude dans l'extrapolation des paliers, mouvement propre fluctuant.

C'est pourquoi, bien que les laboratoires de mesure du Canada, des U.S.A. et de la Grande-Bretagne utilisent actuellement le compteur 4 π proportionnel, nous lui avons préféré le compteur 4 π GM, que nous utiliserons désormais dans la suite de cette étude.

IV

MESURE D'ACTIVITÉ AU COMPTEUR 4 π

La mesure de l'activité d'une solution radioactive comporte un certain nombre d'opérations résumées dans le tableau ci-dessous.

Tableau I.

I - Préparation des sources.

- Préparation du film support de source.
- Détermination du poids de la source.
- Séchage de la source.

II - Mesure des sources.

- Numération des impulsions.
- Correction des pertes de comptage dues au temps mort.
- Correction de la pente du palier.

III - Autres corrections.

- Absorption des particules β dans le film support de source.
- Autoabsorption des particules β dans la source même.

Nous avons étudié systématiquement dans ce qui suit, toutes ces opérations.

V

PRÉPARATION DES SOURCES

La préparation de sources sèches à partir des solutions à mesurer, peut se subdiviser en trois parties :

- Préparation des films supports de source
- Détermination du poids des sources
- Séchage des sources.

1 - PRÉPARATION DES FILMS SUPPORTS DE SOURCES.

Les supports de sources que nous utilisons sont constitués par un film monté sur un anneau de laiton de 35 mm de diamètre extérieur et de 26 mm de diamètre intérieur (Brevet 773 222).

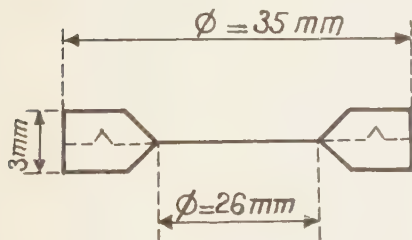


Figure 4 - Anneau porte-source.

Cet anneau de laiton est lui-même constitué de deux anneaux s'emboîtant l'un dans l'autre et permettant de tendre parfaitement le film (fig. 4).

Ces films doivent satisfaire à un certain nombre d'exigences :

- a) être résistant mécaniquement,
- b) résister aux agents chimiques que sont les solutions radioactives,
- c) ne pas perturber le fonctionnement électronique du compteur.

De ce dernier point de vue, les auteurs (Hawking, Seliger, Mann, Pate et Yaffe) s'accordent à reconnaître qu'il est préférable que ces films soient conducteurs (2, 3, 4).

Il semblerait donc qu'il soit avantageux d'utiliser une feuille mince de métal, d'aluminium par exemple. Cependant, et ici nous anticipons sur ce qui sera dit plus loin à propos de l'absorption, de telles feuilles présentant les qualités requises de solidité, d'homogénéité, etc., ne peuvent être usinées avec des épaisseurs comparables à celles que l'on obtient avec les films plastiques.

D'autre part, il est très important d'utiliser des films de la plus faible épaisseur possible afin de réduire considérablement et même d'éliminer les corrections d'absorption.

Préparation des films minces.

Nous avons étudié :

- le chlorure de polyvinyle (rhodopas)
- le formylvinyle (formvar)
- le polystyrène (prolabo)
- l'acétate de cellulose.

En solution dans les solvants suivants : benzène, cyclohexanone, dichlorethane.

Deux méthodes de préparation des films minces, l'une par étalement sur eau et l'autre par étalement sur verre ont été étudiées et comparées.

a) Préparation des films minces par étalement sur eau.

On dépose une petite quantité de haut polymère en solution, dans une cuve remplie d'eau ; la goutte s'étale et on "pêche" le film qui s'est ainsi formé [18]. Les résultats obtenus sont résumés dans le tableau II.

Tableau II

Haut-Polymère	Solvant	Concentration	Epaisseur moyenne en $\mu\text{g}/\text{cm}^2$
Formvar	Dichloréthane	1 %	43
"	"	2 "	95
"	Cyclohexanone	1 "	50
"	"	2 "	170
Rhodopas	Dichloréthane	1 "	69
"	"	2 "	160
"	Cyclohexanone	1 "	40
"	"	2 "	80
Polystyrène	"	1 "	130
"	"	5 "	240
"	Benzène	1 "	48
"	"	2 "	95

La préparation de ces films minces est assez facile à effectuer, mais nous n'avons pu par ce procédé obtenir des épaisseurs inférieures à $40 \mu\text{g}/\text{cm}^2$. D'autre part, en utilisant la méthode d'absorption décrite plus loin, nous n'avons pu constater que cette épaisseur n'est pas uniforme, elle peut varier du simple au double du centre à la périphérie.

Nous avons donc essayé de réduire cette épaisseur, et de la rendre plus uniforme en modifiant le système de préparation [12].

b) Préparation des films minces par étalement sur verre.

Le simple dépôt de la solution sur une plaque de verre, donne des résultats à peu près identiques à ceux obtenus par étalement sur eau. Nous avons modifié ce procédé en nous inspirant du dispositif utilisé par M. Houttermans au Max. Plank Institut de Göttingen (Allemagne Fédérale).

La plaque de verre est fixée sur une platine horizontale montée elle-même sur un axe de centrifugeuse tournant à 7 000 tours/mn.

Quelques gouttes de la solution sont déposées au centre de la plaque tournant à cette vitesse. On décolle le film de la plaque de verre en immergeant progressivement celle-ci dans une cuve d'eau de façon à ce que le film demeure en surface.

Ce décollement n'est possible que si l'on a pris soin au préalable d'étaler sur la plaque un mouillant convenable. Après étude des mouillants suivants :

- Insuline sous forme d'Endopancrine ($40 \text{ UI}/\text{cm}^3$)
- Cetavlon (1) (bromure de cetyltriméthylammonium)
- Tween 20 (2) (polyoxyéthylène sorbitan monooléate)...

Nous avons adopté l'insuline qui nous a semblé donner les meilleurs résultats ; le cetavlon convient également très bien à cet usage.

Cette méthode nous a permis d'obtenir les résultats suivants :

Tableau III

Haut-Polymère	Solvant	Concentration	Epaisseur moyenne en $\mu\text{g}/\text{cm}^2$
Formvar	Dichloréthane	5 %	12
"	"	2 "	5
Rhodopas	"	5 "	12
"	"	2 "	5
Polystyrène	"	5 "	25
"	"	2 "	10
Acétate de cellulose	Acétate d'amyle	5 "	15
	"	2 "	5

(1) Laboratoires Avlon.

(2) Laboratoire du Bois de Boulogne.

Cette méthode permet donc d'obtenir de façon reproductible des films d'environ $5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$, mais ce qui est le plus important c'est qu'il est possible d'obtenir des films d'épaisseur uniforme sur une surface de 5 cm^2 .

Résistance des films minces.

a) Résistance physique.

- résistance mécanique : en cours de montage et à l'usage, les films sont soumis à des efforts mécaniques, les films de rhodopas et d'acétate de cellulose nous ont paru être ceux qui se comportent le mieux à cet égard ;

- résistance à la chaleur : les microgouttes de solution déposées sur les supports de source devant être séchées sous la lampe infra-rouge à une température comprise entre 40 et 60°C , nous avons soumis les films à des températures variant de 60 à 100°C . Nous avons observé une résistance excellente jusqu'à 80°C des quatre sortes de film étudiées ;

- résistance au vieillissement : ce point est assez important car il est intéressant de préparer les films une fois par mois par exemple. Tous les films étudiés ont résistés un mois, l'acétate de cellulose étant cependant le plus résistant des quatre.

b) Résistance chimique.

Dans le cadre précis de cette étude, nous ne pensons pas qu'il soit important de déterminer la résistance des films minces à l'action lente des agents chimiques. En effet, l'action de ceux-ci ne s'exerce qu'entre le moment où l'on dépose la microgoutte sur le support et le moment où la source est sèche soit au maximum 15 mn . L'étude de la résistance des films minces aux agents chimiques a été effectuée sur une durée de 30 mn .

Tableau IV

Agent chimique	Formvar	Rhodopas	Polystyrène	Acétate de cellulose
NO_3H concentré	-	-	-	-
" N/10	+	+	-	+
SO_4H_2 concentré	-	-	-	-
" N/10	-	-	-	+
HCl concentré	-	-	-	+
" N/10	+	+	+	+
NaOH concentré	-	+	-	-
" N/10	+	+	+	+
NH_4OH concentré	-	+	-	+
Benzène	-	+	-	+
Toluène	+	+	-	+

Nota : + : film résistant

- : film attaqué, c'est-à-dire perforé.

Les films les plus résistants aux agents chimiques sont dans l'ordre : l'acétate de cellulose et le rhodopas.

Métallisation des films minces.

Nous avons vu, qu'il est préférable de rendre conducteurs les supports de sources afin de ne pas perturber le fonctionnement électronique du compteur. C'est pourquoi nous avons, en utilisant le procédé classique de métallisation sous vide, déposé sur les films minces une légère couche métallique destinée à les rendre conducteurs.

a) Résistance à la métallisation.

A l'intérieur du métalliseur, les films minces sont soumis à une forte chaleur, à des trépidations et à une dépression assez brutale, leur comportement dépendra donc de la durée de l'opération. Nous avons effectué un certain nombre d'expériences sur les quatre films étudiés, en métallisant avec de l'or et en prolongeant l'opération jusqu'à rupture des films.

Tableau V

Film mince	Exp. 1	Exp. 2	Exp. 3	Exp. 4	Exp. 5	Exp. 6	Exp. 7	Moyenne
Rhodopas	170	165	170	130	190	130	200	165
Polystyrène	120	90	160	130	120	85	100	115
Formvar	200	220	190	195	225	245	280	222
Acétate de cellulose	210	185	160	230	200	215	225	204

Nota : le temps est exprimé en secondes.

Les films les plus résistants à la métallisation sont dans l'ordre de Formvar et l'acétate de cellulose.

Après cette étude préliminaire, nous avons mesuré l'épaisseur du dépôt obtenu en fonction du temps de métallisation.

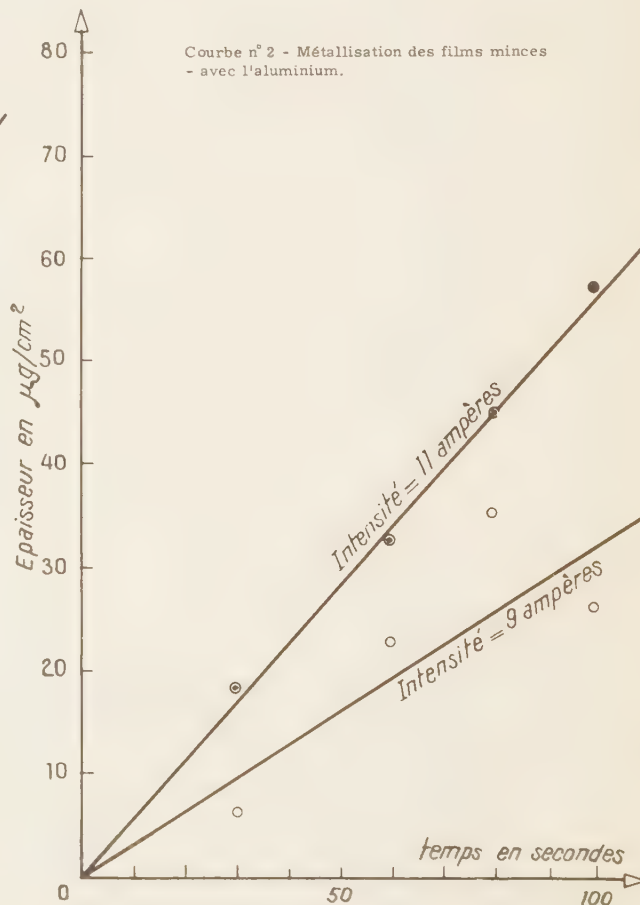
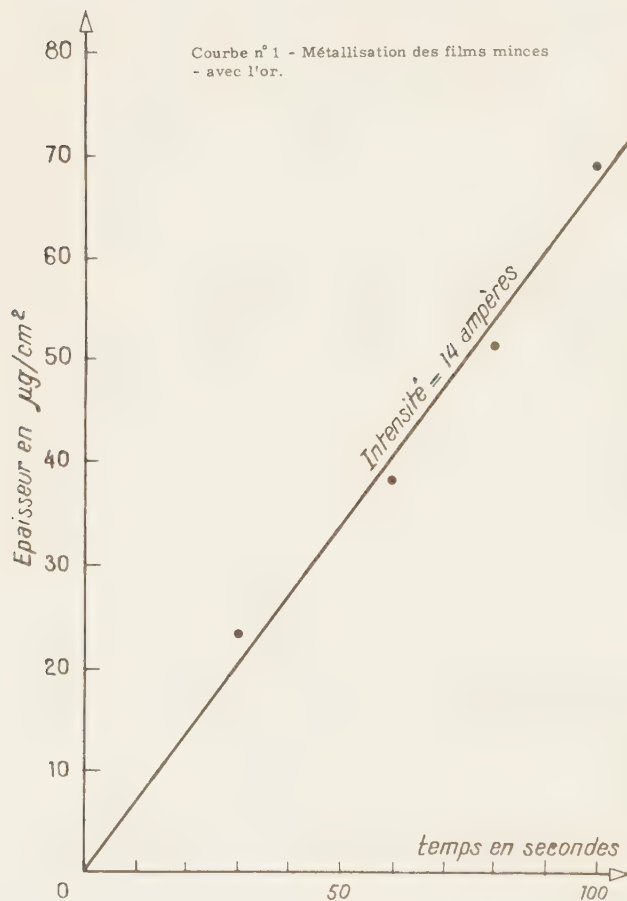
b) Épaisseur de la métallisation en fonction du temps.

- Métallisation avec l'or :

On métallise pendant des temps variables, des films d'une épaisseur moyenne d'environ $30 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ et on détermine par pesée l'épaisseur de la couche d'or supposée homogène. Intensité/filament : 14 ampères.

- Ces résultats sont reportés dans la courbe n° 1.

L'examen de cette courbe montre que l'épaisseur d'or (exprimée en mg/cm^2) déposée par métallisation est loin d'être négligeable, mais il est possible de la diminuer en utilisant un métal plus léger : l'aluminium par exemple.



- Métallisation avec l'aluminium (courbe n° 2).

En utilisant une intensité-filament de 11 ampères, les résultats sont identiques à ceux obtenus avec de l'or et une intensité-filament de 14 ampères.

En réduisant cette intensité à 9 ampères, nous avons constaté une dispersion beaucoup plus importante des résultats.

c) Conclusions.

Pour obtenir un dépôt conducteur il est nécessaire de métalliser pendant environ :

- 120 s avec de l'or et une intensité-filament de 14 ampères, ce qui nous donne un dépôt de $80 \mu\text{g}/\text{cm}^2$;

- 30 s avec de l'aluminium et une intensité-filament de 11 ampères, ce qui nous donne un dépôt de $18 \mu\text{g}/\text{cm}^2$.

Nous voyons que ces épaisseurs ne sont pas du tout négligeables, surtout si on admet qu'une métallisation sur les deux faces du film est nécessaire.

Mesure de l'épaisseur des films minces.

Trois méthodes peuvent être utilisées pour déterminer l'épaisseur des films minces :

- la pesée,
- l'absorption d'un rayonnement β mou dans le film pris comme écran,
- la microscopie interférentielle.

a) La pesée.

Remarquons tout d'abord, qu'il est très difficile pour ne pas dire impossible, d'obtenir des films d'épaisseur parfaitement uniforme et ayant une surface supérieure à 5 cm^2 (ce point de vue est d'ailleurs partagé par de nombreux auteurs : Pate et Yaffe [2]). Aussi, nous semble-t-il très illusoire de déduire d'une pesée portant sur, par exemple, 40 cm^2 de surface une épaisseur moyenne de $x \mu\text{g}/\text{cm}^2$, et d'admettre ensuite qu'un prélèvement de 5 cm^2 aura précisément cette épaisseur $x \mu\text{g}/\text{cm}^2$. En effet, nous avons observé que l'épaisseur d'un film mince peut varier d'un point à un autre du simple au double.

En outre, le film est nécessairement pesé avec son support et son poids s'obtient par différence (support + film) - support nu.

Au cours de cette manipulation, le poids du support peut avoir varié d'une quantité supérieure au poids du film lui-même, par suite de l'eau fixée par exemple.

Ces deux remarques montrent que la gravimétrie n'est pas une méthode commode ; et les résultats obtenus sont d'autant moins précis que le film ne peut être désolidarisé de son support.

Toutefois, pour étudier les possibilités de cette méthode, nous avons pesé des films de 5 cm^2 de surface, non montés sur anneau, c'est-à-dire inutilisable par la suite. En admettant que la précision sur une pesée à la microbalance est de $\pm 2 \mu\text{g}$, la détermination par pesée des épaisseurs de film ne pourrait être retenue que pour les épaisseurs supérieures à $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$.

b) Méthode d'absorption.

On absorbe le rayonnement d'un émetteur β peu énergétique tel que celui du ^{63}Ni , dans le film pris comme écran (fig. 4 bis). Cette méthode nécessite un étalonnage avec des films d'épaisseur connue.

Même si les épaisseurs qui ont servi à l'étalonnage sont connues avec une grande précision et si la géométrie est parfaitement reproductible, les fluctuations statistiques se répercutent de façon considérable sur la mesure de l'épaisseur. Par exemple, une épaisseur de $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ correspond à une variation du taux de comptage $\frac{\Delta N}{N}$ d'environ 1 pour cent,

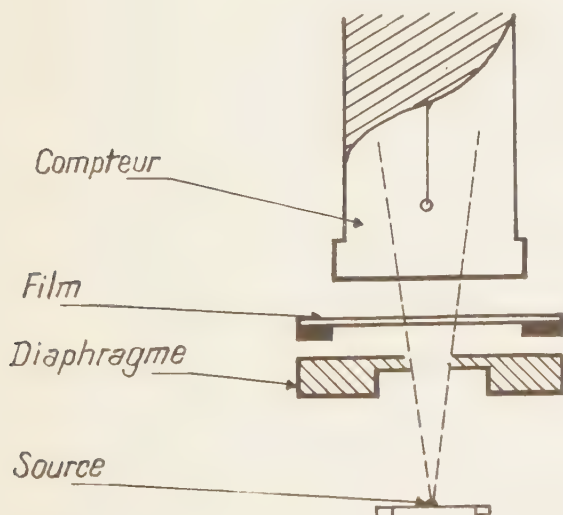


Figure 4 bis - Mesure des épaisseurs de film par absorption.

par suite une fluctuation $\sigma = \sqrt{N}$ de 1 pour cent entraînera une incertitude de $\pm 10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ sur l'épaisseur.

Cette méthode est finalement moins précise que la gravimétrie, toutefois, elle est plus commode et présente de l'intérêt pour les épaisseurs de films supérieures à $30 \mu\text{g}/\text{cm}^2$.

c) Microscopie interférentielle.

Nous avons réalisé ces mesures avec un interféromètre à polarisation Nomarski (1), qui permet l'étude des surfaces en lumière réfléchie.

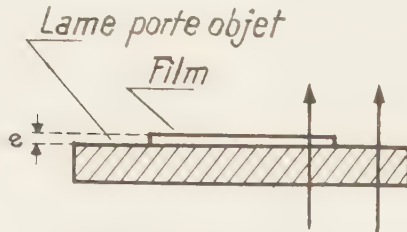


Figure 5 - Mesure des épaisseurs de film par transmission.

Le film à mesurer est déposé sur une lame porte-objet en verre, de façon qu'il y ait contact optique entre les surfaces.

La mesure peut alors se faire de plusieurs façons selon la précision que l'on veut obtenir.

1er cas : l'objet est éclairé par transmission (fig. 5). La différence de marche mesurée par le décalage des franges d'interférence est alors égale à $d = e(n-1)$ avec n : indice de réfraction de la substance dont on veut mesurer l'épaisseur.

L'épaisseur se déduit de la mesure par la formule :

$$e = \frac{\lambda}{n-1} \cdot \frac{a}{i}$$

avec : a = décalage des franges,

i = interfrange,

λ = longueur d'onde utilisée.

(dans notre cas $5450 \text{ \AA}$)

2ème cas : l'objet est éclairé par réflexion ; dans ce cas deux solutions possibles :

α) Figure 6.

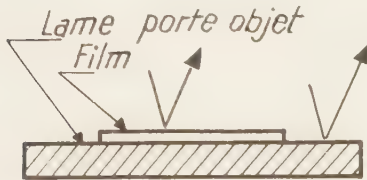


Figure 6 - Mesure des épaisseurs de film par réflexion. 1er cas.

La différence de marche est égale à $d = 2e$, ce qui revient à dire que le décalage des franges sera $\frac{2}{n-1}$ fois plus grand que dans le 1er cas, la précision augmentant dans le même rapport. L'épaisseur est alors donnée par la formule $e = \frac{\lambda a}{i}$

β) Figure 7.

La différence de marche mesurée est alors de $d = 2ne$, ce qui fait gagner un facteur n par rapport au cas précédent et un facteur $\frac{2n}{n-1}$ par rapport au 1er cas. L'épaisseur est alors donnée par

$$\text{la formule } e = \frac{\lambda a}{2ni}$$

Pour effectuer nos mesures, nous nous sommes placés dans ce dernier cas, ce qui nous a permis de déterminer des épaisseurs de l'ordre de $2 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ avec une précision de 10 pour cent, ce qui est suffisant pour notre étude.

Par ailleurs, cet interféromètre à polarisation nous a permis de contrôler l'uniformité de l'épaisseur de nos films. Nous avons obtenu pour des films d'acétate de cellulose et de formvar préparés sur verre les résultats suivants :

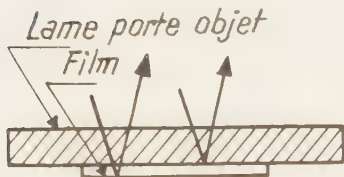


Figure 7 - Mesure des épaisseurs de film par réflexion. 2ème cas.

(1) Constructeur : Nachet.

Film de Formvar n° 1 :	épaisseur en différents points	$\left\{ \begin{array}{l} 7 \text{ } \mu\text{g/cm}^2 \\ 7,2 \text{ } " \\ 6,9 \text{ } " \end{array} \right.$
Film de Formvar n° 2 :	" " "	$\left\{ \begin{array}{l} 5 \text{ } \mu\text{g/cm}^2 \\ 4,8 \text{ } " \\ 5,1 \text{ } " \end{array} \right.$
Film d'acétate de cellulose n° 1 :	" " "	$\left\{ \begin{array}{l} 4,3 \text{ } \mu\text{g/cm}^2 \\ 4,2 \text{ } " \\ 5,1 \text{ } " \end{array} \right.$
Film d'acétate de cellulose n° 2 :	" " "	$\left\{ \begin{array}{l} 3,8 \text{ } \mu\text{g/cm}^2 \\ 3,8 \text{ } " \\ 3,6 \text{ } " \end{array} \right.$

Conclusion. Choix du support de source.

De l'étude précédente, il ressort qu'il est possible de fabriquer de façon courante des films minces ayant une épaisseur égale ou inférieure à $5 \mu\text{g/cm}^2$. D'autre part, l'étude du comportement de films de diverses natures nous a conduit à adopter l'ordre préférentiel suivant :

- acétate de cellulose
- rhodapas
- formvar
- polystyrène

2 - DETERMINATION DE LA QUANTITE DE SOLUTION DEPOSEE SUR LE FILM.

La détermination précise de la quantité de solution déposée sur le film support de source, est fondamentale. C'est pourquoi nous avons comparé les deux méthodes : volumétrie et gravimétrie, qui permettent d'évaluer la partie aliquote déposée sur le film.

COMPARAISON - VOLUMETRIE - GRAVIMETRIE

Volumétrie

Le dépôt et la détermination du volume d'une microgoutte par volumétrie, se fait actuellement par deux méthodes différentes qui correspondent à deux types d'instrument : la microburette et la micropipette.

a) Microburette

Le principe est le suivant : un piston calibré, relié par une vis micro-métrique à un compte-tour, se déplace dans un tube en verre (fig. 8) qui contient la solution. Par conséquent, la précision de la microburette dépend de l'usinage du piston ; celui-ci d'après les constructeurs peut être effectué au $1/100 \text{ mm}$ pour un piston de verre et au $2/1000 \text{ de mm}$ pour un piston métallique recouvert de rhodium.

Ce type de microburette peut fournir des microgouttes de $10 \mu\text{l}$ avec une précision voisine de 0,2 pour cent ; toutefois, les constructeurs reconnaissent qu'il est très difficile d'obtenir des pistons de diamètre constant ; celui-ci est, en général, plus mince dans la partie centrale, ce qui introduit une erreur supplémentaire qui n'est pas très importante pour les volumes supérieurs à $10 \mu\text{l}$, mais qui peut atteindre 2 pour cent pour les microgouttes de 1 à $2 \mu\text{l}$.

La précision que l'on obtient avec cet instrument est quand même satisfaisante puisqu'il est possible avec une bonne microburette, de préparer des microgouttes avec une précision de 0,2 à 0,5 pour cent pour des volumes allant de 100 à $10 \mu\text{l}$.

Toutefois, l'utilisation de ces microburettes présente un certain nombre d'inconvénients. Tout d'abord malgré les rinçages soigneux, il peut se former au cours du temps un léger dépôt sur le piston ; d'autre part on s'expose à des erreurs non négligeables si on ne prend pas la précaution de maintenir la solution à une température bien définie : celle du laboratoire.



Figure 8

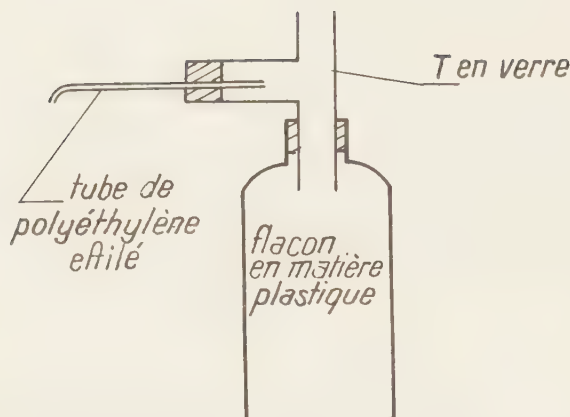


Figure 9 - Micropipette.

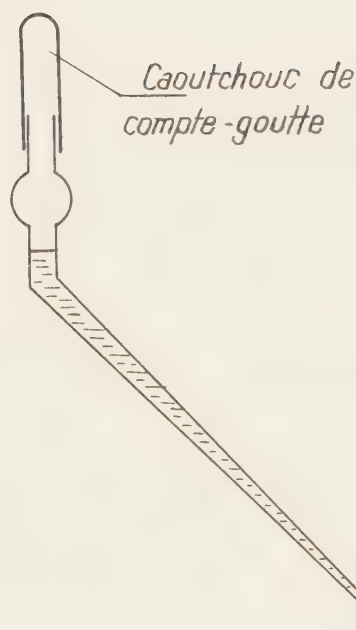


Figure 10 - Pipette effilée.

Enfin, et ceci est l'inconvénient majeur, l'utilisation de solutions radioactives de nature chimique et d'activité spécifique très variables, fait courir un risque important de contamination par adsorption sur le tube de verre et le piston.

Ce risque peut être considérablement réduit en multipliant le nombre de microburettes ; mais cette solution est alors par trop onéreuse.

b) Micropipettes.

Cet instrument mis au point par le Dr Sanz, se caractérise par son extrême simplicité (fig. 9). Il se compose d'un flacon en matière plastique sur lequel est adapté un tube de polyéthylène effilé aux deux extrémités.

Le volume délivré par cette micropipette dépend du volume du tube effilé et l'étalonnage est effectué par pesée.

L'effilage des deux extrémités du tube réduit considérablement l'erreur due aux menisques, d'autre part le polyéthylène contrairement au verre ne "mouille" pas ce qui supprime une erreur pratiquement incontrôlable ; aussi la reproductibilité des résultats est-elle remarquable : sur une dizaine de déterminations à la microbalance l'écart maximum par rapport à la valeur moyenne n'a pas dépassé 0,4 pour cent pour des micropipettes de 10 et 5 μ l et 0,7 pour cent pour une micropipette de 2,5 μ l.

Afin d'étudier le comportement de ces micropipettes avec des solutions radioactives, nous avons mesuré au compteur 4 π , dix sources de ^{32}P préparées à l'aide d'une micropipette de 2,55 μ l et nous avons obtenu les résultats suivants :

Source	Activité mesurée en c/m	Ecart
1	2 220	- 17
2	2 237	-
3	2 218	- 19
4	2 276	+ 39
5	2 204	- 33
6	2 266	+ 29
7	2 241	+ 4
8	2 236	- 1
9	2 258	+ 21
10	2 210	- 27

Moyenne : 2 237 c/m Ecart moyen : ± 18 soit : $\pm 0,8$

L'écart statistique sur les mesures étant de $\pm 0,3$ pour cent, l'erreur due au pipettage lui-même est de l'ordre de 0,5 pour cent.

En définitive, les micropipettes sont un peu moins précises que les microburettes, mais leur prix de revient très modique qui permet d'en utiliser un grand nombre, la simplification de leur étalonnage, le risque très faible de contamination, nous les font préférer aux microburettes.

Gravimétrie.

La solution est prélevée à l'aide d'une pipette effilée (fig. 10) qui délivre la goutte à peser. Cette pipette est au préalable rincée avec la solution à mesurer pour éviter toute perte d'activité par adsorption. La pipette ne sert qu'à une opération, elle est jetée après usage.

La précision obtenue dépend donc exclusivement de la précision de la balance et de la correction l'évaporation. Nous avons à cette fin comparé deux types de microbalance. La microbalance Longue a deux plateaux au 1/500 mg et la microbalance Mettler monoplateau au 1/1 000 mg.

Pour éliminer un certain nombre de causes d'erreur, le mode opératoire a toujours été le suivant : le support de source étant déposé sur le plateau de la balance et taré, la goutte est alors déposée sur le film sans que celui-ci soit retiré du plateau.

Les deux microbalances sont placées dans une salle située dans le sous-sol du bâtiment et thermostatisée à 24 °C. La microbalance Longue repose sur une table de béton, la microbalance Mettler repose sur une table de fer scellée sur un bloc de béton, lui-même isolé du reste de la construction.

a) Fidélité.

En effectuant de nombreuses déterminations d'une masse de 5 mg et d'une masse de 10 g, nous avons constaté que les écarts maximum par rapport à la valeur moyenne étaient :

masse de 5 mg	$\left\{ \begin{array}{l} \pm 3 \mu\text{g} \text{ avec la Microbalance Longue} \\ \pm 4 \mu\text{g} \text{ avec la Microbalance Mettler} \end{array} \right.$
masse de 10 mg	$\left\{ \begin{array}{l} \pm 4 \mu\text{g} \text{ avec la Microbalance Longue} \\ \pm 4 \mu\text{g} \text{ avec la Microbalance Mettler} \end{array} \right.$

b) Sensibilité.

L'écart maximum observé sur la détermination d'une masse de 5 mg pour des charges de 0 - 5 g - 10 g et 15 g étant de 5 μg pour les deux microbalances, on peut considérer les sensibilités comme satisfaisantes. Il faut cependant noter que le contrôle de cette sensibilité doit être effectué très régulièrement, nous avons en effet observé, à la suite de heurts accidentels, des variations non négligeables de celle-ci.

c) Stabilité du zéro.

<u>Date</u>	<u>MB Longue</u>	<u>MB Mettler</u>
21 - 5 - 1957	0	0
29 - 5 - 1957	- 10 μg	+ 20 μg
31 - 5 - 1957	+ 5 μg	+ 30 "
7 - 6 - 1957	- 2 "	- 8 "
11 - 6 - 1957	- 6 "	+ 11 "

Le tableau précédent nous montre que la stabilité du zéro est plus grande avec la microbalance à deux plateaux.

Toutefois en effectuant un contrôle de stabilité sur un temps plus court, correspondant davantage à nos conditions expérimentales, les écarts maximum observés ont été, pour une série de dix déterminations à raison d'une, toutes les quinze minutes de :

2 μg pour la microbalance Longue

4 μg pour la microbalance Mettler

d) Précision.

Nous avons comparé avec les deux microbalances une boîte de poids étalons que nous a fourni la maison Longue.

<u>Masse</u>	<u>MB Longue</u>	<u>Différence</u>	<u>MB Mettler</u>	<u>Différence</u>
2,060 mg	2,060 mg	0	2,059 mg	- 1 μg
5,012 mg	5,015 mg	+ 3 μg	5,018 mg	+ 6 μg
5,000010 g	5,000020 g	+ 10 μg	5,000033 g	+ 23 μg
10,000000 g	10,000005 g	+ 5 μg	9,999980 g	- 20 μg
15,000010 g	15,000025 g	+ 15 μg	15,000006 g	- 4 μg

Nous constatons qu'il existe une différence entre les deux microbalances, qui ne serait pas négligeable si nous opérions par simple pesée. Mais la pesée par différence nous permet d'éviter cette erreur : en effet, les deux microbalances ont ceci de commun que la lecture se fait directement sur une échelle micrométrique étalonnée de 0 à 20 mg pour la balance Mettler et de 0 à 5 mg pour la balance Longue.

Par suite, les variations toujours possibles des masses (poussières, usure, etc.) n'affectent pas la pesée de la source si son poids est compris dans l'échelle de lecture directe, ce qui est notre cas, les microgouttes ayant un poids variant de 1 à 5 mg.

Il faut donc se garder de changer les poids en cours de pesée sinon on s'exposerait à une erreur qui peut être importante comme nous l'avons observé à la microbalance Mettler.

- Pesée d'un poids de 10 g environ équilibré par 10 g $\rightarrow$ 9,999978 g
- Pesée du même poids équilibré par 9,999900 $\rightarrow$ 10,000022 g

Différence 44 μ g soit 4/10⁶ du poids de 10 g, mais 2 pour cent du poids pour une microgoutte de 2 mg.

e) Commodité.

En fait, la commodité se ramène à la rapidité avec laquelle on effectue la pesée. Pour étudier celle-ci, nous décomposerons la pesée en deux stades : tare du support et pesée de la microgoutte.

- Tare du support : elle est beaucoup plus rapide avec la balance Mettler qui est semi-automatique (90 s au lieu de 180 s avec la microbalance Longue);

- Pesée de la source : la stabilisation des deux microbalances est sensiblement identique (environ 40 s) toutefois, la balance monoplateau Mettler est beaucoup plus sensible aux heurts et à l'introduction dans la cage de la main du manipulateur que la microbalance à deux plateaux Longue.

Cette comparaison des deux types de microbalance nous a montré qu'il est possible de préparer avec l'une ou l'autre, des microgouttes de 2 mg avec une précision de 0,25 pour cent et de 5 mg avec une précision de 0,1 pour cent.

C'est pourquoi il est difficile de faire un choix entre ces deux microbalances qui sont d'excellents outils. Cependant, si les pesées avec la microbalance monoplateau sont plus rapides, nous accorderons notre préférence à la microbalance Longue, pour la stabilité de son zéro et pour sa moins grande sensibilité aux variations de température et de pression.

Les pesées doivent naturellement être corrigées de l'évaporation, cette correction est dans le cas le plus défavorable égale à 1 % du poids de la microgoutte soit 20 μ g pour une goutte de 2 mg.

Si l'on admet une erreur de 10 % sur cette correction soit dans l'exemple précédent 2 μ g, l'erreur finale sur la pesée sera de 0,1 %.

Il faut toutefois, noter que si on prend la précaution de laisser séjourner la solution à l'intérieur de la pièce jusqu'à équilibre de température, la correction d'évaporation devient de quelques pour mille et par suite l'erreur finale peut être considérée comme négligeable.

Conclusion

Il ressort de cette comparaison entre les méthodes volumétriques et gravimétriques, que les microbalances sont plus précises que les micropipettes et que d'autre part le risque d'erreur est moins grand.

Par conséquent, toutes les sources utilisées dans la suite de cette étude ont été pesées à la microbalance. Toutefois, l'utilisation de microbalances est beaucoup plus délicate que l'emploi des micropipettes. De plus, ces dernières sont beaucoup moins onéreuses, c'est pourquoi nous pensons qu'elles conviennent très bien dans les déterminations d'activité où une très grande précision n'est pas exigée.

3 - SECHAGE DES SOURCES.

Différentes méthodes sont possibles :

- à l'air libre,
- sous la lampe infra-rouge,
- sublimation sous vide (freeze-Drying).

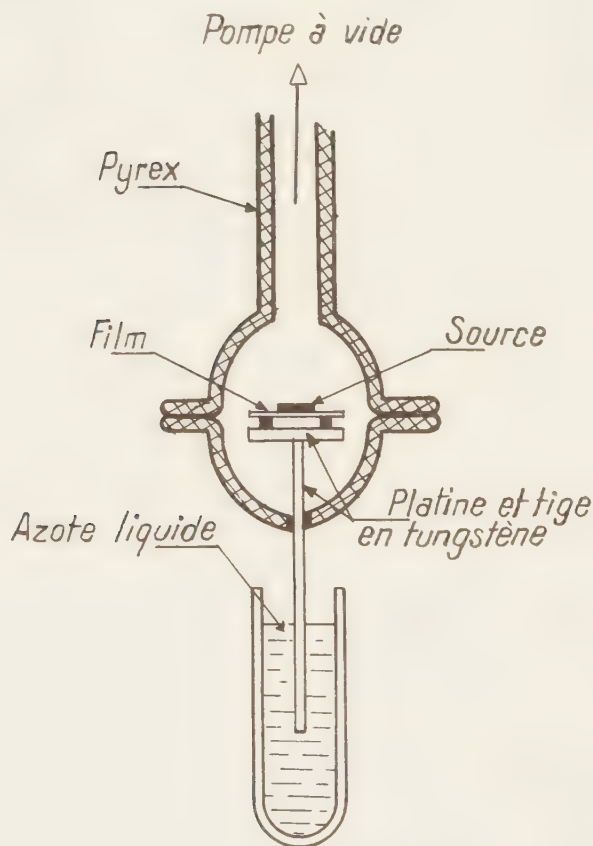


Figure 19 - Méthode de sublimation sous vide.

La première qui est très lente n'est à retenir que pour des radioéléments très volatils (^{82}Br - ^{131}I , etc.).

La seconde, de loin la plus rapide est celle qui est couramment utilisée ; mais elle provoque une cristallisation périphérique qui peut être gênante dans certains cas.

La troisième méthode qui consiste à faire le vide sur une source préalablement congelée par l'intermédiaire d'un plateau en contact avec l'azote liquide (fig. 19), ne présente pas l'inconvénient qui vient d'être signalé, mais elle est lente et nettement plus délicate, son emploi ne s'impose que dans un nombre très restreint de cas (sels hygroscopiques, forte quantité d'entraîneur).

VI

CORRECTIONS SUR LA NUMÉRATION

La précision obtenue dans la numération des désintégrations dépend de l'évaluation précise des pertes de comptage et de la détermination de l'activité vraie à partir du palier du compteur.

DETERMINATION DU POINT DE FONCTIONNEMENT EN 4π .

Deux cas peuvent se présenter :

- le palier à une pente nulle : c'est le cas général. Il n'y a donc pas de difficultés en ce qui concerne le choix de la tension de fonctionnement ; l'incertitude sur la détermination de l'activité dépend uniquement des écarts statistiques,

- le palier à une pente positive (comprise entre 0 et 2 pour cent).

Dans ce cas, comment déterminer l'activité vraie de la source mesurée ? Nous avons essayé de résoudre expérimentalement d'une part en recherchant quelles pourraient être les origines de la pente ; d'autre part, en déterminant à quelle tension le compteur fonctionne rigoureusement en 4π .

1/ Etude de la pente des paliers au 4π GM.

a) Variation de la pente en fonction du temps.

La courbe n° 10 comprend trois parties nettement définies. Tout de suite, après le remplissage du compteur, la pente atteint 2 pour cent pour devenir nulle 5 ou 6 h après. Nous attribuons cette pente à un mauvais équilibre du mélange gazeux et il semble donc indiqué d'attendre ce laps de temps avant de commencer les mesures.

La pente demeure ensuite pratiquement nulle pendant un mois (période pendant laquelle il n'y a par conséquent pas de problème d'extrapolation).

Enfin la pente augmente progressivement et atteint 1,5 pour cent au bout de 50 j environ de fonctionnement continu. Nous attribuons cette augmentation de la pente à la présence dans le compteur d'impuretés gazeuses (air).

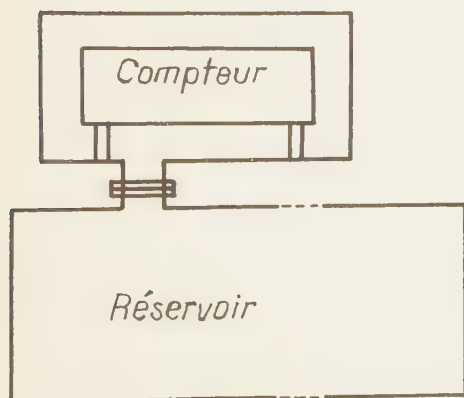


Figure 13 - Réservoir du compteur 4π GM.

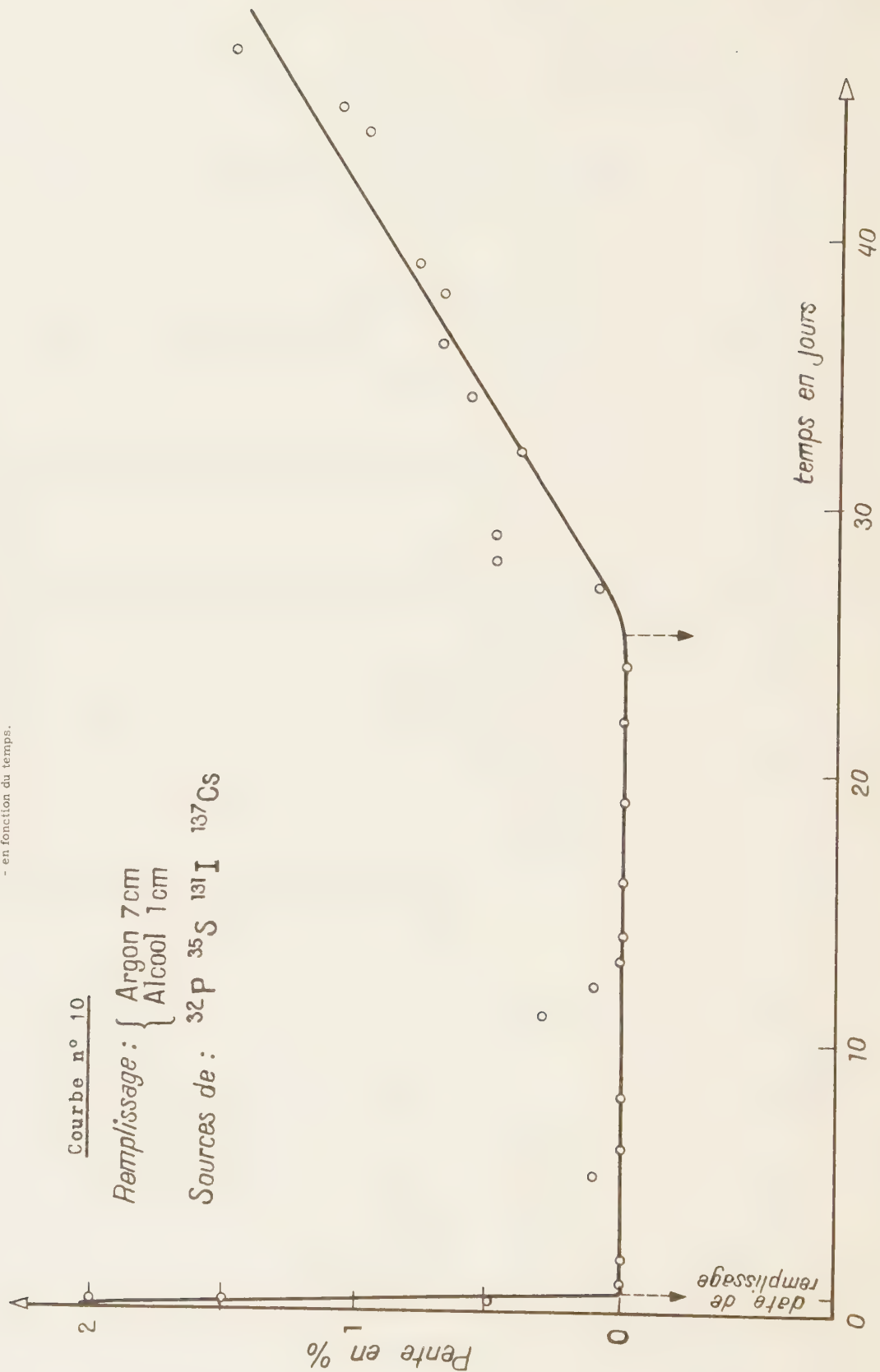
L'utilisation permanente du compteur diminue sensiblement la pression à l'intérieur de celle-ci, cette diminution dépend naturellement du nombre de mesures effectuées et peut passer de 8 cm à 5 cm après deux mois de fonctionnement : par suite, le rapport $\frac{\text{Volume d'air dû aux fuites}}{\text{Volume du mélange de remplissage}}$ devient plus important.

Pour pallier cet inconvénient, nous avons augmenté le volume de gaz sans toutefois augmenter le volume utile du compteur (ce qui présenterait un certain nombre d'inconvénients, entre autres une augmentation importante du mouvement propre), en adjoignant au compteur un réservoir d'une contenance de 30 litres environ (fig. 13). Ce dispositif permet d'introduire 100 à 200 sources sans apporter de modifications sensibles à la pente des paliers.

b) Variation de la pente avec la température ambiante.

Nous avons constaté que notre compteur 4π était

Courbe n° 10 - Variations de la pente des paliers au 4 πGM
- en fonction du temps.



très sensible aux variations importantes de la température ambiante, comme le montre la série de paliers n° 11. Il est donc nécessaire de travailler dans une pièce thermostatée à 20-22°C.

c) Variation de la pente avec le temps mort.

Les courbes n° 12 qui représentent les variations de pente obtenues avec des temps morts de $4 \cdot 10^{-4}$ s, 10^{-3} s et $2 \cdot 10^{-3}$ s montrent que :

- la pente varie avec le temps mort imposé et est d'autant plus grande que le temps mort est faible,

- si l'on extrapole les paliers ceux-ci convergent vers un point situé approximativement au seuil de comptage.

Ces deux constatations tendent à justifier l'hypothèse des coups multiples, selon laquelle les ions positifs créés à l'intérieur du compteur, peuvent dans certain cas arracher un électron à la paroi de celui-ci. Cet électron est compté à son tour, ce qui fait que l'on enregistre deux impulsions pour une seule particule incidente.

Toutefois, avant d'admettre définitivement cette hypothèse, nous avons vérifié que la pente des paliers ne provient pas d'une mauvaise réponse du compteur, et pour cela, nous avons effectué une courbe de discrimination et une courbe d'amplification (courbe n° 13), en un point très voisin du seuil de l'appareillage. Ces courbes sont concluantes : elles montrent que dès le seuil le compteur fonctionne bien effectivement en Geiger et que son efficacité est bien égale à 1 ; même pour ces valeurs de la tension. La pente ne peut donc être imputée qu'à des impulsions secondaires, dont le nombre augmente avec la tension.

2/ Extrapolation des résultats.

Il reste donc à déterminer en quel point du palier le taux de comptage correspond au nombre de particules β émises par la source. C'est pourquoi nous avons effectué les deux expériences suivantes.

a) Variation de la pente avec le temps.

Nous avons soigneusement mesuré un étalon de ^{90}Sr et ^{90}Y de période 27,7 ans, 3 jours après le remplissage du compteur ; puis nous avons laissé vieillir celui-ci en traçant périodiquement le palier.

Nous avons ensuite extrapolé tous les paliers présentant une pente différente de zéro jusqu'à l'intersection avec le palier à pente nulle. Nous avons obtenu les résultats suivants :

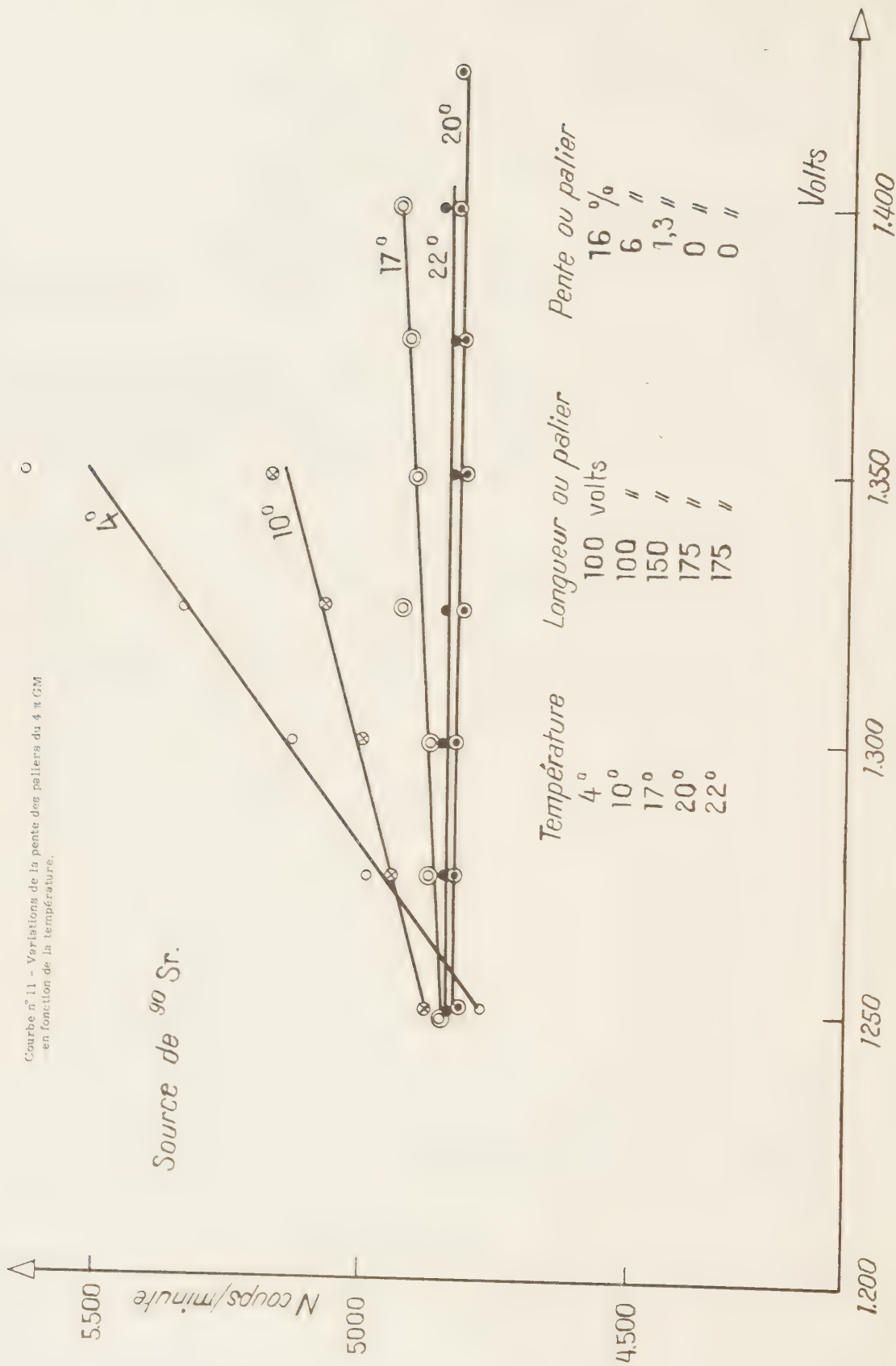
<u>Pente du palier.</u>	<u>Point d'intersection défini par rapport au seuil.</u>
0,4 % pour 100 V	+ 20 V
0,7 " "	+ 5 "
1 " "	+ 5 "
1,4 " "	0 "
2 " "	+ 15 "
2 " "	0 "
2,3 " "	- 5 "
2,8 " "	+ 10 "
3 " "	+ 5 "

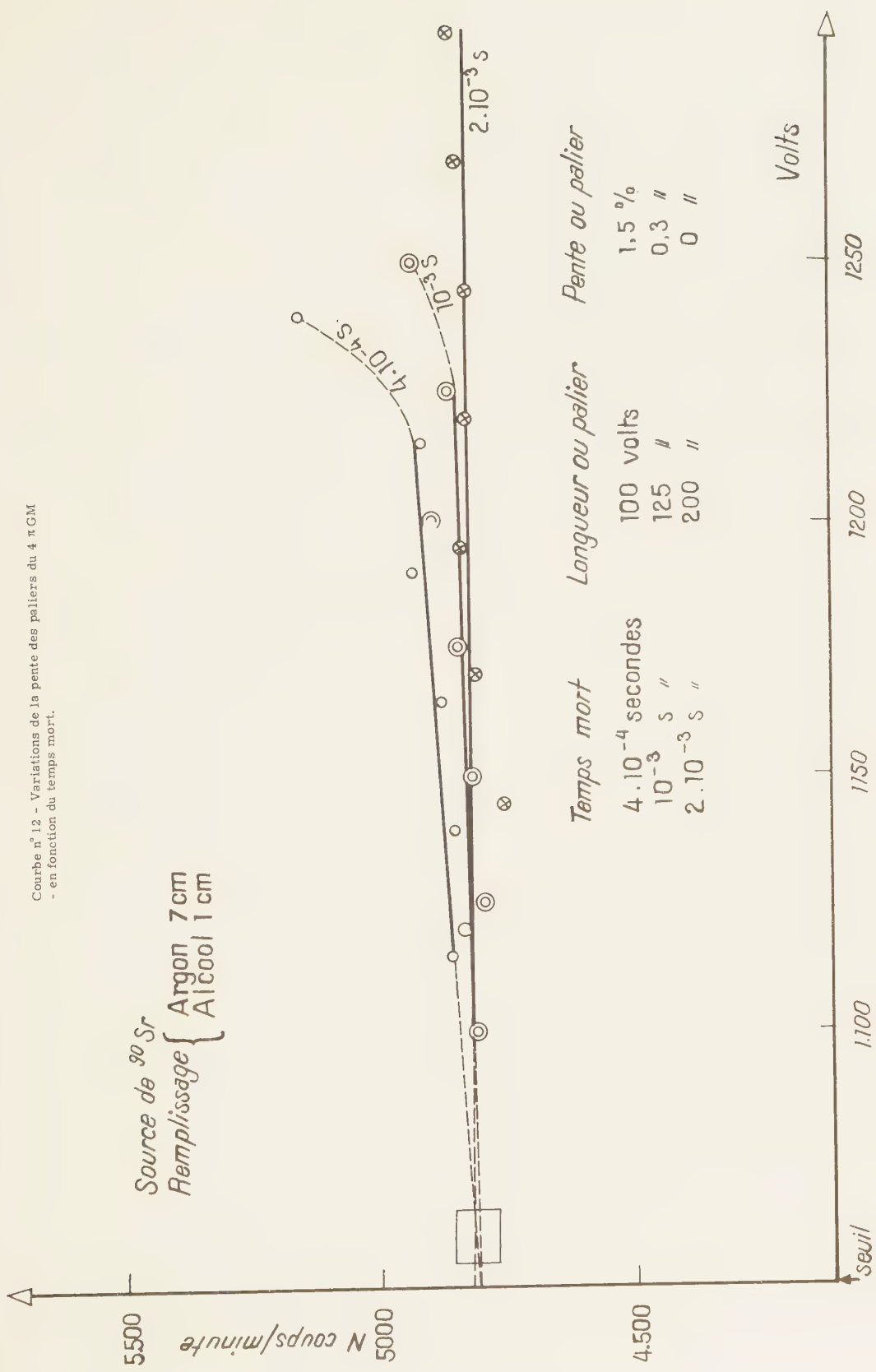
En moyenne, le point d'intersection se situerait à 5 V environ au-dessus du seuil.

b) Variation de la pente avec le temps mort.

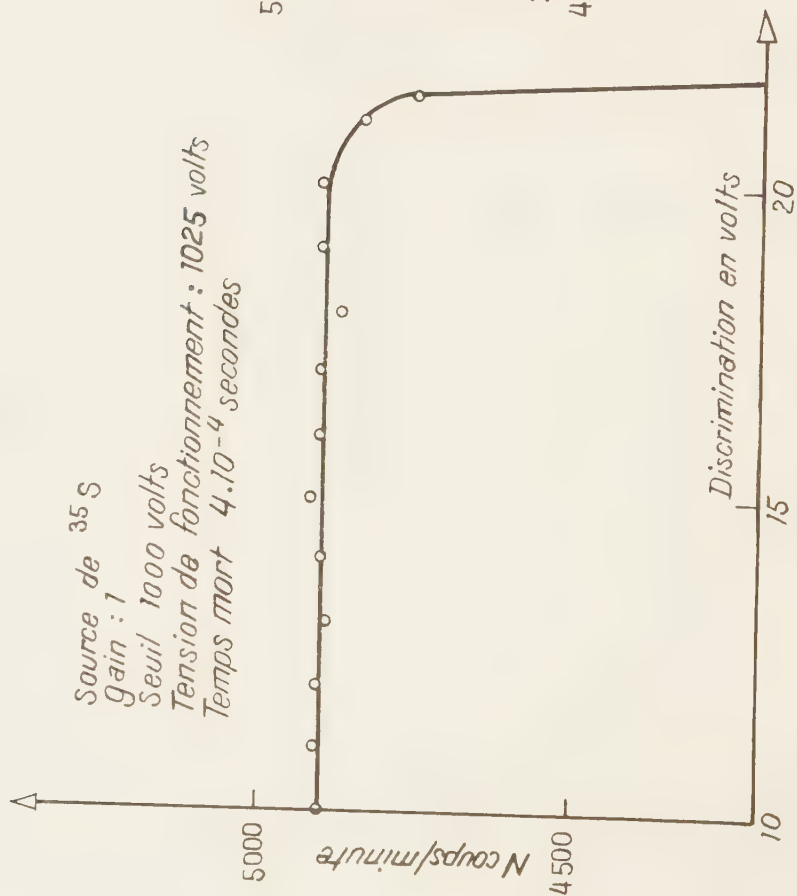
Toujours avec la même source de $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$, nous nous sommes placés dans des conditions où le palier présentait une forte pente (3 pour cent environ) pour un temps mort de $4 \cdot 10^{-4}$ s, nous avons ensuite fait varier ce temps mort. Puis nous avons de même que dans l'expérience précédente, déterminé le point où les paliers ainsi obtenus, coupent le palier à pente nulle. Les résultats obtenus sont donnés ci-dessous.

<u>Temps mort</u>	<u>Point d'intersection défini par rapport au seuil.</u>
$4 \cdot 10^{-4}$ s	+ 5 V
$8 \cdot 10^{-4}$ s	+ 10 V
10^{-3} s	+ 15 V
$1,2 \cdot 10^{-3}$ s	+ 10 V

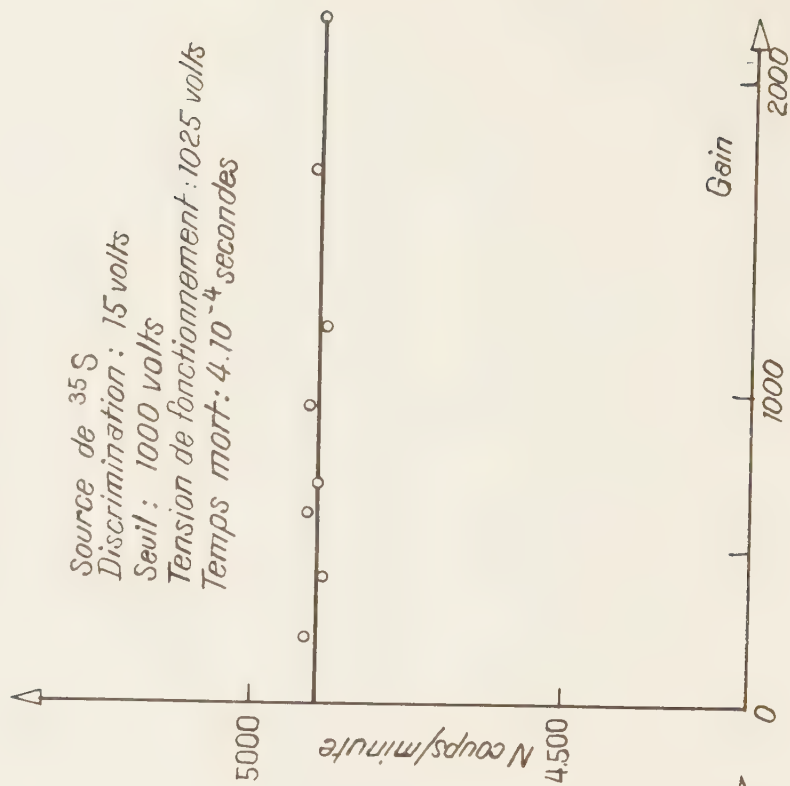




Courbe n° 13 A - Variations de l'activité mesurée au 4 π GM
- en fonction de la discrimination.



Courbe n° 13 B - Variations de l'activité mesurée au 4 π GM
- en fonction de l'amplification.



Dans cette expérience, le point d'intersection se situerait en moyenne à 10 V au-dessus du seuil.

Ces différentes mesures d'une même source doivent naturellement conduire à la même valeur. Tous ces paliers y compris le palier à pente nulle convergent approximativement vers le même point situé à 10 V au-dessus du seuil de comptage. On peut affirmer qu'en ce point, pour l'appareillage utilisé le compteur fonctionne bien en GM et son efficacité est égale à 1. En conséquence, la méthode arrêtée pour déterminer l'activité de la source consiste dans tous les cas :

- à tracer le palier du compteur avec la source à mesurer,

- puis à extrapoler le plateau jusqu'à 10 V au-dessus du seuil, quand le palier présente une pente positive (fig. 14).

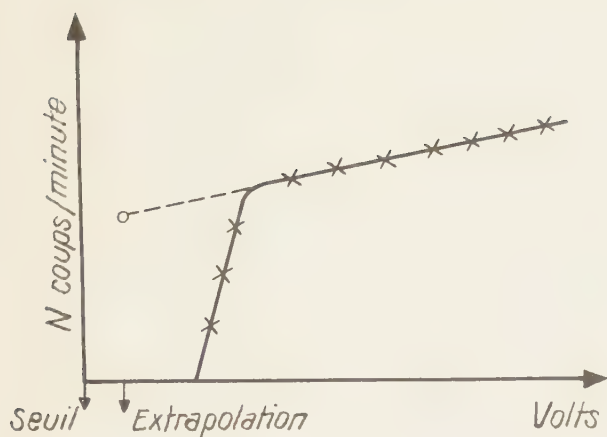


Figure 14 - Extrapolation des paliers du 4 π GM.

VII

AUTO-ABSORPTION

Les solutions radioactives livrées par les services producteurs de radioéléments artificiels, aux différents utilisateurs (mèdecins, industriels, etc.), contiennent souvent de l'entraîneur ou des substances provenant de traitements préalables. Le problème de l'auto-absorption du rayonnement dans la source même, revêt par conséquent, une grande importance.

Calculons de façon très approximative l'ordre de grandeur de cette auto-absorption pour une source de 3 mg de ^{35}S préparée à partir d'une solution contenant 2 mg/cm³ de SO_4Na_2 .

Si la surface de la source sèche est d'environ 1,5 mm², l'auto-absorption sera de l'ordre de 7 pour cent.

De nombreux auteurs font le calcul théorique de cette auto-absorption et ajoutent cette correction à l'activité mesurée. Mais ce calcul est nécessairement très imprécis pour diverses raisons : mauvaise définition de la surface, donc de l'épaisseur, réflexions successives, diffusion etc., en outre, il ne tient pas compte de l'inhomogénéité de la structure cristalline de la source.

Aussi est-il important de se placer dans des conditions telles que la correction d'auto-absorption soit aussi faible que possible. L'obtention d'une répartition parfaitement homogène des cristaux est à cet égard essentielle.

1 - ETUDE DE LA REPARTITION CRISTALLINE.

Cette étude a été faite avec les sels suivants, qui sont ceux que l'on rencontre le plus souvent dans les mesures de radioéléments : Na_3PO_4 - Na_2CO_3 - FeCl_3 - NaCl - et Na_2SO_4 [11].

a) Cas général.

Nous avons vu précédemment que les sources destinées aux mesures 4π sont obtenues par dépôt sur un film mince, d'une microgoutte (2 à 3 mg) de la solution à mesurer. Cette goutte est ensuite séchée sous une lampe infra-rouge.

L'examen à la binoculaire Reichert (grossissement 200) des sources ainsi préparées, montre une cristallisation presque entièrement périphérique avec, par point, d'importantes agglomérations de cristaux (cliché n° 1).

Nous avons tout d'abord tenté de réduire l'inhomogénéité cristalline, en ajoutant à la source aussitôt après pesée une certaine quantité d'eau ; ce procédé qui provoque un étalement de la source, réduit l'importance des concentrations périphériques de façon sensible mais non suffisante.

Nous avons ensuite essayé le procédé indiqué par Seliger et Schwebel dans "Nucleonics" de juillet 1954, procédé qui consiste à faire sécher les sources radioactives dans un dessiccateur en présence de NH_3 . Cette méthode qui donne des complexes ammoniacaux donne des cristaux de dimensions plus faibles et plus régulières, mais la répartition de cette cristallisation n'est pas toujours uniforme, de plus, ce procédé augmente le facteur d'auto-absorption puisqu'on ajoute de l'ammoniac à la quantité d'entraîneur déjà contenue dans la solution. Différents auteurs [9] [10] ayant utilisé des protéines dans la préparation de sources destinées à la spectrométrie, nous avons repris cette étude avec des mouillants appropriés afin d'obtenir des sources ayant une structure cristalline homogène. L'influence d'un certain nombre d'agents mouillants a donc été systématiquement examinée [11].

b) Utilisation d'agents mouillants.

Procédé expérimental.

On dépose environ 50 à 100 mg de mouillant sur le film porte-source de façon à couvrir une surface



Cliché n° 1 -
1° - Source de 2 mg de PO_4Na_3 contenant 100 mg/g d'entraîneur.
- Sans agent mouillant.
- Grossissement 100.

de l'ordre du cm^2 . On aspire ensuite le mouillant de façon à n'en laisser sur le film qu'une quantité très faible que l'on sèche à la lampe infra-rouge. On dépose ensuite la microgoutte de solution à mesurer.

Les solutions de Na_3PO_4 , NaCl , Na_2CO_3 , FeCl_3 et Na_2SO_4 que nous avons utilisées pour cette étude, contenaient de 4 mg/g à 100 mg/g d'entraîneur, valeurs nettement supérieures aux teneurs les plus courantes. Les essais ont été effectués tout d'abord en utilisant du polystyrène de 1 mg/ cm^2 comme support de source ; puis nous avons appliqué les résultats de cette première étude aux films minces de formvar, rhodopas et acétate de cellulose d'une épaisseur moyenne de 20 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$. (Clichés 2-3-4-5).

c) Epaisseur du dépôt due aux mouillants.

La réduction de l'auto-absorption par l'utilisation des mouillants ne présente d'intérêt que si le dépôt du mouillant n'augmente pas sensiblement l'absorption. Des mesures d'épaisseur de ce dépôt ont été faites par pesée à la microbalance et par absorption des β du ^{35}S .

Les mouillants étant déposés sur un film de formvar de 20 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ environ, nous avons obtenu sur dix déterminations les épaisseurs maximum suivantes :

- Insuline 40 UI/cm : 20 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$
- Insuline 20 UI/cm : 10 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$
- Teepol 1/10 : 20 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$
- Cétavlon 1/10 : 30 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$
- Tween 1/25 < 5 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$

d) Conclusion.

L'étude précédente fait apparaître que l'endopancrine (20 à 40 UI/ cm^3 d'insuline), le Tween 20 (dilution 1/25), le Cétavlon (dilution 1/10) sont d'excellents agents mouillants qui permettent pour un dépôt d'épaisseur négligeable :

- de rendre la cristallisation parfaitement uniforme,
- de multiplier pour un même poids, la surface de la source par un facteur 50 ou 100.

2 - ETUDE QUANTITATIVE DE L'AUTO-ABSORPTION (réf. [11])

Après avoir réussi à rendre uniforme la répartition cristalline des sources à mesurer, nous avons appliqué ces résultats à l'étude quantitative de l'auto-absorption afin de classer à cet égard les divers agents mouillants.

1/ Comparaison des différents agents mouillants.

Après avoir sélectionné qualitativement les mouillants suivants : insuline 40 UI/ cm^3 , insuline 20 UI/ cm^3 , Tween 20 dilution 1/25, cétavlon dilution 1/10, teepol dilution 1/10, nous les avons utilisés dans la préparation de sources radioactives.

Nous avons choisi le ^{35}S pour sa faible énergie maximum 0,169 MeV, ce qui facilite la sélection des agents mouillants. La solution utilisée pour cette expérience est une solution de ^{35}S sous forme H_2SO_4 et contenant 4 mg/g d'entraîneur.

Nous avons obtenu les résultats suivants, qui représentent pour chaque agent mouillant une moyenne sur trois sources.

- Insuline 20 UI/ $\text{cm}^3 \rightarrow 1,980 \mu\text{curie/g}$
- Tween 20 dilution 1/25 $\rightarrow 1,975 \mu\text{curie/g}$
- Insuline 40 UI/ $\text{cm}^3 \rightarrow 1,960 \mu\text{curie/g}$
- Cétavlon dilution 10 % $\rightarrow 1,870 \mu\text{curie/g}$
- Teepol dilution 10 % $\rightarrow 1,65 \mu\text{curie/g}$
- Sources préparées sans mouillant $\rightarrow 1,36 \mu\text{curie/g}$

Ces résultats montrent :

1/ que l'emploi de mouillants réduit très notablement l'auto-absorption. Dans le cas le moins favorable (teepol) ; celle-ci est de l'ordre de 25 pour cent ;

2/ que les différents agents mouillants n'ont pas à cet égard la même efficacité. Les meilleurs sont l'insuline 20 UI/ cm^2 et le tween, ensuite vient l'insuline 40 UI/ cm^2 . Cette classification confirme celle qui résulte de l'étude qualitative (clichés n° 2, 3, 4 et 5). Or, celle-ci portant non seulement sur le sulfate, mais également sur les carbonates, phosphates et chlorures, on est donc en droit de penser que l'insuline 20 et le tween sont les mouillants qui réduisent le plus l'auto-absorption pour la plupart des composés habituels.



Cliché n° 2 -
- Source de 2 mg de PO_4Na , contenant 100 mg/g d'entraîneur.
- Etallement avec insuline 40 UI.
- Grossissement 100.



Cliché n° 3 -
 ^{32}P - Source de 2 mg de PO_4Na_3 contenant 100 mg/g d'entraîneur.
- Etalement avec insuline 20 UI.
- Grossissement 100.



Cliché n° 4 -
³²P - Source de 2 mg de PO_4Na_3 contenant 100 mg/g d'entraîneur.
- Etalé avec cétaïon 1/10.
- Grossissement 100.



Cliché n° 5 -
- Source de 2 mg de PO_4Na_1 contenant 100 mg/g d'entraîneur.
- Etalement avec Tween 20, dilution 1/25.
- Grossissement 100.

2/ Facteur de réduction de l'auto-absorption.

Afin d'étudier en valeur absolue, la relation de l'auto-absorption provoquée par l'utilisation des mouillants, nous avons mesuré deux solutions de ^{35}S , l'une sans entraîneur, sous forme H_2SO_4 (solution A), l'autre (solution B) préparée à partir de la solution A ; par addition de 2 mg/g de Na_2SO_4 . A partir de chaque solution, plusieurs sources ont été préparées et nous avons obtenu les résultats suivants en coups/mn/mg (tableau n° VIII).

Tableau n° VIII

Solution A sans entraîneur	Solution B = A + 2 mg/g SO_4Na_2 sans mouillant	Solution B = A + 2 mg/g SO_4Na_2 avec mouillant
source n° 1 - 6820	source n° 1 - 5810	source n° 1 - 7040
source n° 2 - 7100	source n° 2 - 5930	source n° 2 - 6940
source n° 3 - 7090	source n° 3 - 5860	source n° 3 - 7150
source n° 4 - 6970	source n° 4 - 5870	source n° 4 - 7020
Moyenne : 6995 c/m/mg	Moyenne : 5867 c/m/mg	Moyenne : 7035 c/m/mg

Cette expérience montre :

1/ que pour des sources préparées dans des conditions identiques, 2 mg/g de Na_2SO_4 entraînent, une auto-absorption d'environ 16 pour cent pour le ^{35}S ;

2/ que l'utilisation d'un mouillant provoque un étalement d'environ 1 cm^2 et donne une répartition très homogène de la cristallisation ;

3/ que la masse superficielle moyenne qui est dans ce cas de l'ordre de 4 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ au lieu de 300 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ dans le cas des sources préparées sans mouillant, donne une auto-absorption négligeable pour des concentrations d'entraîneur égales ou inférieures à 2 mg/g dans le cas du ^{35}S . Les résultats obtenus dans ces conditions opératoires étant identiques, aux fluctuations statistiques près, à ceux obtenus sans entraîneur ;

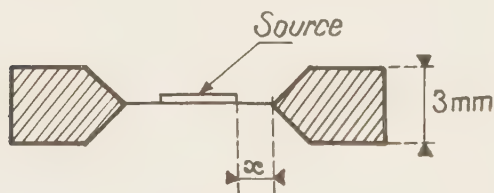


Figure 15 - Etalement des sources.

4/ que les concentrations admissibles d'entraîneur pourraient donc être de beaucoup supérieures pour des émetteurs β plus énergiques.

L'utilisation des mouillants provoque un étalement de la source, celle-ci ayant un diamètre final de 10 à 12 mm. Encore faut-il que l'utilisation de sources de ce diamètre ne réduise pas l'efficacité du compteur en réduisant l'angle solide.

3 - COMPORTEMENT DU COMPTEUR 4π AVEC DES SOURCES PRÉPARÉES AVEC MOUILLANT.

Cette étude revient en fait, à déterminer la distance minimum admissible $\underline{x}$ entre la périphérie de la source et le support proprement dit (fig. 15) pour que le compteur soit effectivement 4π .

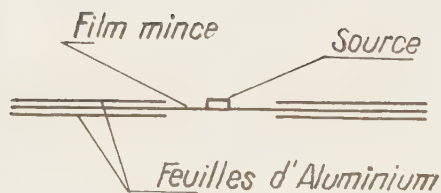
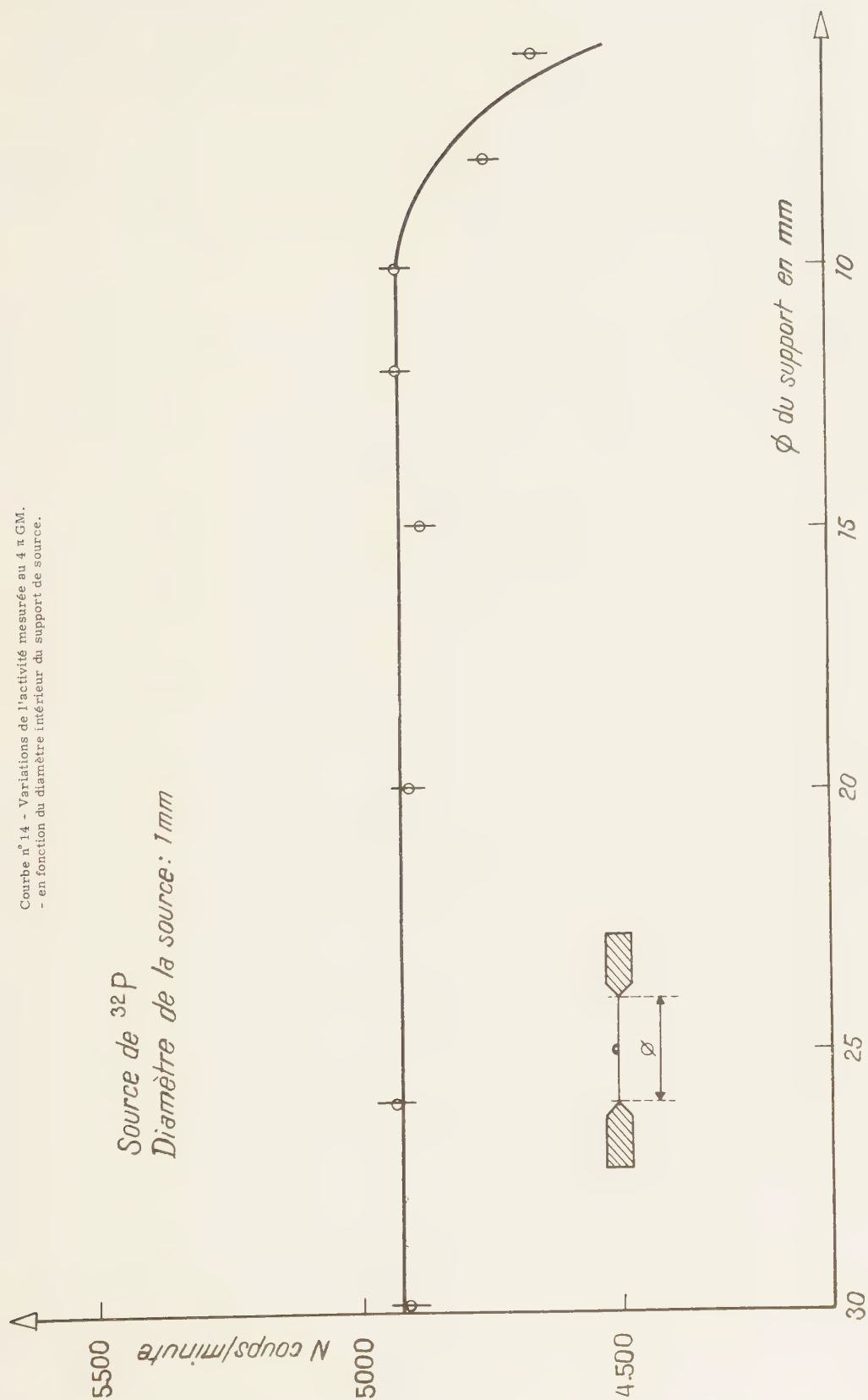


Figure 16 - Montage des films en "Sandwich".

Nous avons donc essayé de déterminer cette distance minimum $\underline{x}$ en faisant varier le diamètre intérieur du support de source, en conservant toujours le même film et la même source de ^{32}P ($\phi = 1 \text{ mm}$). En représentant les variations de l'activité mesurée en fonction du diamètre du support de source, nous avons obtenu les résultats qui figurent dans la courbe n° 14.

Ces résultats montrent que l'activité mesurée qui est constante de 30 mm à 10 mm de diamètre, diminue en-dessous de cette valeur. Nous considérons donc que la distance minimum admissible $\underline{x}$ est de 5 mm pour la source considérée.

Courbe n° 14 - Variations de l'activité mesurée au 4 π GM.
- en fonction du diamètre intérieur du support de source.



Cette distance peut paraître considérable et incompatible avec l'étude théorique du fonctionnement du compteur 4π GM ; mais il faut préciser que cette distance dépend du dispositif porte-source et peut être diminuée en utilisant un film pris en sandwich entre deux feuilles métalliques (fig. 16).

A ce dernier dispositif, nous avons préféré l'utilisation d'anneaux porte-source en laiton, très bien usinés qui donnent une ouverture de diamètre constant ne présentant pas d'aspérités, et qui permettent de tendre parfaitement les films.

Par conséquent, si la distance minimum x est de 5 mm, le diamètre inférieur admissible de l'anneau porte-source sera de 22 mm pour une source de 12 mm de diamètre. Compte tenu qu'il n'est pas toujours facile de contrôler l'étalement et le centrage du dépôt mouillant, nous avons porté ce diamètre à 26 mm et c'est ce type de support qui a définitivement été adopté.

VIII

CORRECTIONS D'ABSORPTION

Une des corrections dont l'estimation est la plus délicate, surtout lorsqu'il s'agit d'émetteurs β très peu énergiques est celle due à l'absorption dans le support de source.

Son évaluation tentée par différents auteurs [3], [5], [6], [15], [16], [17] conduit pour une même épaisseur de support, à des résultats assez divergents (tableau n° IX).

Tableau n° IX

Nuclide	Energie β en MeV	k = pour un film de 150 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$		
		Hawkings [3]	Seliger [5]	Yaffe [6]
^{63}Ni	0,067	16	12,5	14
^{35}S	0,169	7,6	5	4
^{45}Ca	0,254	4	3,8	2,5

k : facteur correctif d'absorption exprimé en pour cent de la détermination brute.

On conçoit que dans ces conditions, il est difficile de prétendre à une précision globale de 2 ou 3 pour cent sur l'activité des émetteurs β mous.

Pour nous libérer d'une estimation qui s'avère assez aléatoire, nous avons cherché à nous placer dans des conditions où la correction d'absorption puisse être considérée comme négligeable, par rapport aux autres corrections même pour les émetteurs peu énergiques, en réduisant l'épaisseur du film-support.

A cette fin, nous avons été amenés à substituer aux feuilles métalliques primitivement utilisées, des films plastiques de hauts-polymère.

Aux épaisseurs auxquelles on peut descendre avec ceux-ci, les feuilles métalliques sont difficilement utilisables en raison, en particulier, de leur fragilité, surtout si le diamètre du support est appréciable.

1 - REDUCTION DE L'ABSORPTION PAR L'UTILISATION DE FILMS MINCES.

Différents hauts polymères ont été systématiquement étudiés [12], tant du point de vue de leur résistance à l'action de divers agents que de leur résistance mécanique, et de l'épaisseur limite sous laquelle ils pouvaient être obtenus. Films étudiés : polystyrène, formvar, rhodopas, acétate de cellulose. L'épaisseur limite qu'il a été possible d'atteindre et de maintenir constante sur 13 cm^2 de surface, était de 5 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ environ.

A cette épaisseur, la correction d'absorption est négligeable pour les émetteurs β dont $E_{\text{max}} > 0,1$ MeV. Mais l'introduction d'une discontinuité dans la surface conductrice séparant les deux moitiés du compteur, perturbe inévitablement la distribution du champ au voisinage de la source, et par voie de conséquence, le fonctionnement du compteur.

Ceci se traduit, en particulier, par un accroissement notable de la pente du compteur, qui entraîne une imprécision dans la mesure.

Pour pallier cet inconvénient, il est indispensable comme tous les auteurs l'ont constaté de rendre le film conducteur, par exemple en le métallisant. Quelle doit être l'épaisseur minima de la couche métallique ? Doit-on métalliser les deux faces du film ou la métallisation d'une seule face est-elle suffisante ?

Enfin, plutôt que de métalliser le film, peut-on envisager un autre procédé pour le rendre suffisamment conducteur ? C'est à ces questions que nous avons tenté de répondre, en étudiant systématiquement différents procédés pour rendre le film conducteur, ou plutôt, pour le rendre suffisamment peu isolant, le critère, à cet égard, étant la pente du palier.

1/ Métallisation des deux faces du film.

Avec un dépôt de $15 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ d'or sur chaque face, on obtient pour le ^{35}S une pente inférieure à 0,2 pour cent, ce qui peut être considéré comme très satisfaisant. Epaisseur du film même : $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$; au-dessous de cette valeur, il ne supporterait pas la métallisation sous vide. Epaisseur totale : $40 \mu\text{g}/\text{cm}^2$; valeur pour laquelle la correction d'absorption pour le ^{35}S et le ^{14}C n'est pas négligeable.

2/ Métallisation sur une seule face.

Pour un film de nature et d'épaisseur données, on constate que dans ce cas, l'épaisseur de métal nécessaire pour obtenir une certaine valeur de la pente est supérieure à l'épaisseur totale de métallisation sur deux faces, donnant le même résultat.

3/ Graphitisation du film (cette technique nous a été indiquée par le Docteur Houtermans du Max Planck Institut de Göttingen). Elle se réalise en mélangeant à la solution organique de haut-polymère servant à la préparation du film une suspension dans le toluène de graphite colloïdal (teneur en graphite : 2 pour cent). L'épaisseur de film minimum permettant d'obtenir une pente inférieure à 0,2 pour cent est de $30 \mu\text{g}/\text{cm}^2$.

4/ Graphitisation et métallisation sur une face.

En couplant les procédés 1/ et 3/, on peut, pour une même pente descendre à des épaisseurs nettement plus faibles (tableau n° X).

Tableau X

Epaisseur du film	Epaisseur de métal	Epaisseur totale	Pente %
$10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$	$5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$	$15 \mu\text{g}/\text{cm}^2$	0,6
10 "	7 "	17 "	0,2
10 "	10 "	20 "	0

Avec des films graphités et métallisés sur une seule face de $20 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ d'épaisseur totale, il est donc possible d'avoir une pente nulle et de travailler dans d'excellentes conditions.

A cette épaisseur, la correction d'absorption est éliminée pour les énergies supérieures à 0,3 MeV.

Par contre, dans ces mêmes conditions, cette correction, pour des émetteurs tels que ^{45}Ca , ^{35}S , ^{14}C et ^{63}Ni , quoique faible, ne peut être négligée.

Il est nécessaire, si on veut éliminer cette correction pour les émetteurs les plus mous, de déposer les sources sur des supports d'épaisseur inférieure à $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$. Si en même temps, on s'impose la condition d'avoir une pente inférieure à 0,2 pour cent, cette épaisseur, dans le cas le plus favorable des films métallisés ne peut être inférieure à $20 \mu\text{g}/\text{cm}^2$. On ne peut donc envisager de résoudre ce problème, qu'en utilisant des films non métallisés. Mais, dans les conditions d'utilisation précédentes l'introduction de tels films provoquerait une pente considérable et la précision serait déplorable. Nous avons donc été amenés à nous demander s'il n'était pas possible en se plaçant dans des conditions convenables d'obtenir, même avec des films minces non métallisés des pentes négligeables. La deuxième partie de cette étude a précisément pour objet la recherche de ces conditions [13].

2 - FONCTIONNEMENT DU COMPTEUR 4π LORSQUE LA SOURCE EST DEPOSEE SUR UN FILM MINCE NON CONDUCTEUR.

On conçoit, avant même toute expérience que la présence d'une surface de séparation isolante très mince des deux moitiés du compteur, puisse perturber le fonctionnement de celui-ci. Et cela en particulier pour deux raisons : mauvaise évacuation des charges, et par conséquent, modification du champ, possibilité de traversée du film, soit par des β réfléchis, soit par des ions d'une voie vers l'autre et par conséquent, répercussion sur chaque moitié du compteur des phénomènes produits sur l'autre.

Pour élucider le comportement du compteur dans les conditions qui viennent d'être dites, on a effectué les expériences suivantes :

- rappelons que l'activité, abstraction faite des corrections est : $N_{4\pi} = N_1 + N_2 - C$ (a) avec :
 N_1 et N_2 - impulsions respectivement comptées sur les voies 1 et 2 du compteur,
- C - coïncidences "enregistrées" entre les deux voies.

Nous désignerons par HT_1 et HT_2 les tensions respectivement appliquées sur 1 et 2 et par ϕ le temps de résolution de l'amplificateur à coïncidences.

Les expériences qui suivent ont été faites avec une source de ^{32}P ($E_{\text{max}} = 1,7 \text{ MeV}$) déposée sur film d'acétate de cellulose non graphité, non métallisé, de $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$.

Première expérience.

La source précitée ayant été mesurée, on a appliqué l'ensemble source-support d'acétate de cellulose sur un film de mylar métallisé de $800 \mu\text{g}/\text{cm}^2$.

L'activité mesurée dans ces nouvelles conditions toute correction d'absorption faite, est très inférieure à la première détermination. Ceci conduit à penser que dans la relation (a) théoriquement exacte, les valeurs expérimentales de N_1 , N_2 et C, dans le cas du film mince non métallisé, ne sont pas correctes. La pente du compteur dans la mesure avec film de mylar était de 0 pour cent, on est en droit de penser que cette mesure était donc correcte comme il a pu être vérifié par ailleurs.

Que $N_{4\pi}$, dans le cas du film mince, soit très supérieur à l'activité véritable, signifie, soit que N_1 et N_2 sont supérieurs à leur vraie valeur, soit que C "enregistré" est inférieur à C vrai.

Deuxième expérience.

Variations de N_1 , N_2 , C et $N_{4\pi}$ en fonction de la tension appliquée ($HT_1 = HT_2$). Les résultats sont représentés dans les courbes n° 15. Les pentes respectives de ces courbes sont les suivantes :

<u>Pente N_1</u>	<u>Pente N_2</u>	<u>Pente C</u>	<u>Pente $N_{4\pi}$</u>
10 %	10 %	110 %	7 %

Ces résultats appellent quelques remarques.

a) Les pentes sont trop fortes pour que le compteur puisse être utilisable.

b) Le rapport $C/N_{4\pi}$ qui est voisin de 2 pour cent avec des films épais métallisés, atteint ici 30 pour cent. Ceci se comprend, si on admet que les coïncidences sont dues à :

- des rayons β , qui émis sur une voie, traversent après réflexion le film pour pénétrer sur la voie 2,
- des ions libérés dans une voie par les β et traversant le film au lieu d'être recueillis par lui, s'ils sont suffisamment accélérés par le champ (fig. 17).

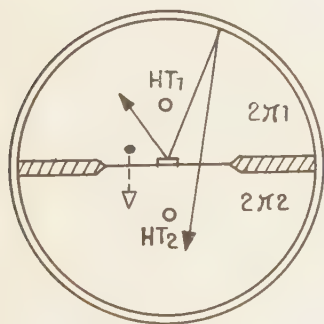


Figure 17 - Origine des coïncidences.

L'importance de ces phénomènes dépend évidemment d'une part, de l'épaisseur du film, d'autre part, pour le second de la tension appliquée. Plus celle-ci sera élevée, plus grand sera le nombre de coïncidences (courbe n° 15 c).

Troisième expérience

On fait varier HT_1 en conservant $HT_2 = 0$. Résultats ; pente $N_1 = 0$ pour cent (au lieu de 10 pour cent quand HT_2 est différent de 0).

On inverse, évidemment ces résultats en faisant $HT_1 = 0$ et HT_2 variable. En ce cas, pente $N_2 = 0$ pour cent, or,

$$N_{1 \text{ mesuré}} = N_{1 \text{ vrai}} + C$$

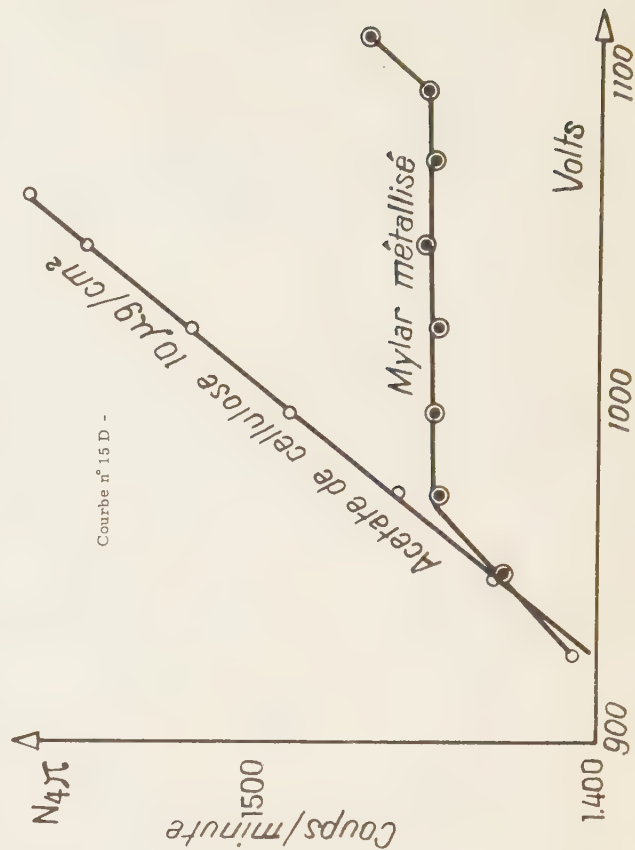
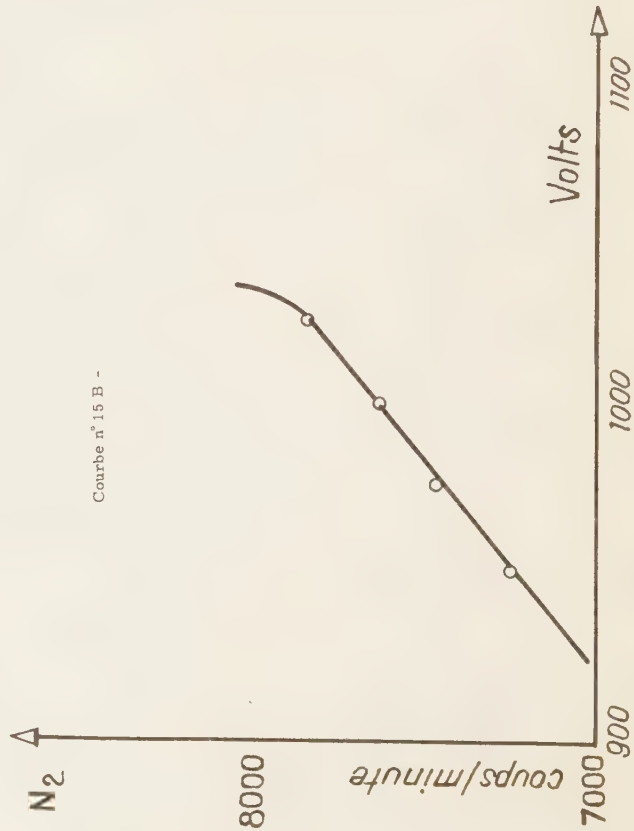
Donc C reste constant.

Quatrième expérience.

On donne à HT_2 une valeur constante, voisine de seuil et on fait varier HT_1 . Résultats :

$N_{1 \text{ mesuré}}$ augmente avec une pente de 10 pour cent,

Variations de $N_1 - N_2 - C$ et $N_{4\gamma}$ au 4π GM.



$N_{2 \text{ mesuré}}$ augmente également mais sa pente est seulement de 3 pour cent.

C enregistré reste constant.

Si N_1 et N_2 mesurés augmentent avec la tension, c'est que C véritable augmente aussi ; comme C enregistré reste invariable, c'est que C enregistré < C vrai.

Cet ensemble d'expérience montre :

- a) la répercussion sur chaque voie des décharges produites sur l'autre,
- b) que C enregistré est inférieur à C réel.

Comment expliquer ce dernier fait : appelons ϑ le temps de résolution de l'amplificateur et désignons par t , le temps qui s'écoule entre l'avalanche de Townsend produite par exemple sur la voie 1, par un rayon β et le déclenchement d'une avalanche sur la voie 2, provoqué par le passage à travers le film d'un ion libéré par la première avalanche. Deux cas sont possibles :

a) $\vartheta < t$ (fig. 18 A).

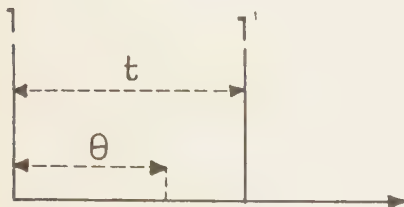


Figure 18 A -

L'événement 1' qui est en coïncidence "physique" avec 1 sera cependant "séparé" de lui par l'amplificateur et C enregistré sera inférieur à C vrai.

b) $\vartheta > t$ (fig. 18 B).

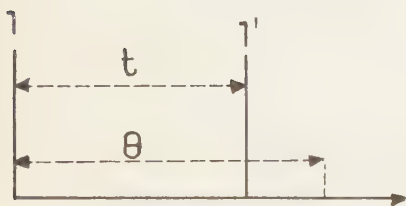


Figure 18 B -

Les événements 1 et 1' ne seront pas dissociés par l'amplificateur et seront par conséquent enregistrés comme coïncidents. Dans ces conditions $N_{4\pi}$ devrait être indépendant de la tension (pente $N_{4\pi}$ voisine de 0 pour cent). Si cette interprétation est valable, on doit pouvoir le vérifier en faisant varier ϑ et déterminer de cette façon un seuil au-dessus duquel ϑ devra être réglé. D'où :

Cinquième expérience.

Variation de caractéristiques partielles et totale du compteur en fonction de ϑ . En faisant varier ϑ de 1 à 10 μs , on a obtenu les résultats suivants :

ϑ	Pente N_1	Pente N_2	Pente C	Pente $N_{4\pi}$
1 μs	10 %	10 %	100 %	7 %
4 μs	10 "	10 "	135 "	0,2 "
10 μs	9 "	10 "	136 "	0,2 "

Ceci montre que le temps moyen qui sépare, pour le compteur utilisé et dans les conditions précisées, un événement sur une voie de sa répercussion sur l'autre, est de l'ordre de 4 μs , en tout cas supérieur à 1 μs qui était la valeur du temps de résolution de l'amplificateur, au cours de ce travail avant la cinquième expérience.

3 - CONCLUSION.

1/ Cet ensemble de résultats confirme que l'utilisation de films minces comme supports de sources, provoque des répercussions des phénomènes produits, dans une moitié du 4π sur l'autre.

2/ Ces résultats montrent qu'en associant au dispositif de numération un amplificateur à coïncidences dont le temps de résolution ϑ est légèrement supérieur au temps moyen de "transport" des ions d'une voie à l'autre, on élimine l'influence sur la détermination de l'activité des répercussions dont il a été parlé.

Il faut toutefois éviter de prendre ϑ trop grand, sinon, on compterait cette fois-ci comme coïncidents, des événements physiques distincts et on aurait : C enregistré supérieur à C vrai. La valeur critique de ϑ est une caractéristique du compteur et chaque expérimentateur doit le déterminer pour l'appareil qu'il utilise.

Pour le compteur utilisé au cours du présent travail, la valeur finalement adoptée pour ϑ , a été de 4 μs .

3/ La condition définie au paragraphe 2 étant réalisée, il est alors possible d'utiliser des films minces isolants non métallisés, et d'obtenir en même temps pour $N_{4\pi}$ une pente inférieure à 0,2 pour cent. Avec l'appareil qui a servi au présent travail, on utilise couramment de tels films de 5 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$, éliminant ainsi complètement toute correction d'absorption, même pour des émetteurs tels que ^{16}S et ^{14}C .

IX

PRÉCISION

Afin de déterminer le mieux possible la précision que l'on est en droit d'attendre dans les déterminations d'activité au compteur 4π , nous avons conservé dans ce qui suit, le plan de cette étude pour calculer à chaque stade la limite supérieure de l'erreur relative.

1 - DETERMINATION DU POIDS DE LA SOURCE.

1/ Erreur sur la pesée : les sources utilisées sont en général des microgouttes de 2 à 3 mg ; or, nous avons vu que l'incertitude dans la détermination du poids est de l'ordre de 5 μ g. Par conséquent, l'erreur maximum sera de $\frac{0,005}{2} = 2,5 \text{ ‰}$.

2/ Erreur d'évaporation : le temps de pesée est environ de 40 s pendant lequel, pour une source de 2 mg, l'évaporation est de 20 μ g. Si l'on admet une erreur de 10 pour cent sur cette correction, nous commettrons donc une erreur de 2 μ g sur le poids de la microgoutte et l'erreur maximum sera de 1 pour mille.

3/ Erreur sur le poids des sources :

+ erreur de pesée	2,5 ‰
+ erreur d'évaporation	1 "
erreur sur le poids	3,5 ‰

2 - NUMERATION DES SOURCES.

1/ Erreur statistique : Prenons un écart égal à ($\sigma = \sqrt{N}$) auquel correspond une probabilité de 68 pour cent. Pour une source dont les taux de comptage seraient les suivants :

$$\left\{ \begin{array}{ll} 2\pi 1 & : 5000 \text{ c/m} \\ 2\pi 2 & : 5000 \text{ " } \\ C & : 100 \text{ " } \\ MP & : 150 \text{ " } \end{array} \right.$$

Nous aurons en effectuant une mesure de 5 mn, pour chaque point du palier les écarts statistiques suivants :

$$\Delta N = \frac{\sqrt{25000}}{5} + \frac{\sqrt{25000}}{5} + \frac{\sqrt{500}}{5} + \frac{\sqrt{750}}{5} = 74$$

et :
$$\frac{\Delta N}{N} = \frac{74}{9750} = 7,6 \text{ ‰}$$

Cet exemple naturellement n'a pas de signification absolue. Mais la source prise ici comme exemple correspond aux activités couramment mesurées et l'erreur calculée donne par conséquent l'ordre de grandeur des erreurs statistiques. Mais il faut considérer que la valeur définitive adoptée est la moyenne des 7 ou 8 mesures qui déterminent le palier. Ceci ramène l'écart statistique à environ 3 pour mille.

2/ Erreur sur le temps mort. La détermination du temps mort est effectuée avec une précision minimum de 4 pour cent, ce qui donne pour un taux de comptage 5000 c/m sur chaque voie une erreur maximum de :

a) 2 ‰ si le temps mort utilisé est de $4 \cdot 10^{-4}$ s.

b) 5 ‰ si le temps mort utilisé est de 10^{-3} s.

3/ Erreur sur l'extrapolation des paliers : Deux cas :

a) Pente du palier $< 0,3$ pour cent pour 100 V, dans ce cas, l'erreur est négligeable, l'incertitude sur l'extrapolation est uniquement due aux écarts statistiques.

b) Pente du palier $> 0,3$ ‰ pour 100 V. Nous avons vu que l'incertitude sur le point d'extrapolation est de ± 10 V, ce qui pour une pente de 3 pour cent pour 100 V (maximum tolérable), donne une erreur maximum de 3 pour mille.

4/ Limite supérieure de l'erreur sur la numération.

a) Temps mort : $4 \cdot 10^{-4}$ s. Pente du palier $\leq 0,3$ pour cent, erreur statistique + erreur sur temps mort = 3 ‰ + 2 ‰ = 5 ‰

b) Temps mort : 10^{-3} s. Pente du palier $\geq 0,3$ pour cent, erreur statistique + erreur sur temps mort + erreur sur extrapolation : 3 ‰ + 5 ‰ = 11 ‰

3 - CORRECTIONS

1/ Erreur sur l'auto-absorption. Cette erreur dépend évidemment de la quantité d'entraîneur et de l'énergie du radio-élément considéré ; nous avons distingué deux cas :

a) Concentration en entraîneur < 10 mg/g : c'est le cas général et si l'on admet une erreur de 10 pour cent sur la correction d'auto-absorption, l'erreur maximum sera dans le cas le plus défavorable $\leq$ 3 ‰

b) Concentration en entraîneur $\gg 10$ mg/g : ces concentrations sont peu courantes ; elles entraîneraient pour une solution de ^{35}S contenant 50 mg/g d'entraîneur, une auto-absorption de l'ordre de 10 pour cent et une erreur sur celle-ci de l'ordre de 1 ‰

2/ Erreur sur l'absorption.

a) Utilisation de films minces : nous avons vu que dans ce cas la correction est inférieure à 0,5 pour cent ; par suite, l'erreur sur cette correction peut être considérée comme négligeable.

b) Utilisation de films de mylar de $800 \mu\text{g}/\text{cm}^2$: dans ce cas, la correction est très variable en fonction de l'énergie de l'émetteur (~ 12 pour cent pour ^{35}S et 0,4 pour cent pour ^{32}P).

Par suite, la limite supérieure de l'erreur variera de 0,2 ‰ pour le ^{32}P à 6 ‰ pour le ^{35}S .

4 - PRECISION.

Pour conclure cette énumération des erreurs qui entachent la mesure d'activité au compteur 4π , nous avons calculé la limite supérieure de l'erreur relative dans deux cas pour une source de ^{35}S .

1/ Cas général :

$$\left\{ \begin{array}{l} \vartheta = 4 \cdot 10^{-4} \text{ s, pente du palier } \leq 0,3 \text{ ‰} \\ \text{utilisation de films minces, entraîneur } \leq 10 \text{ mg/g.} \end{array} \right.$$

- erreur sur la détermination du poids :	3,5 pour mille
- " " la numération :	5 " "
- " " l'auto-absorption :	3 " "
- " " l'absorption :	0 " "

total : 11,5 pour mille

2/ Cas particulièrement défavorable :

$$\left\{ \begin{array}{l} \vartheta = 10^{-3} \text{ s, pente du palier } = 2 \text{ ‰} \\ \text{utilisation de films de mylar, entraîneur } 50 \text{ mg/g.} \end{array} \right.$$

-		erreur sur la détermination du poids :	3,5	pour mille
-	"	" la numération :	11	" "
-	"	" l'auto-absorption :	10	" "
-	"	" l'absorption :	6	" "

total : 30,5 pour mille

Le comportement du compteur 4π comme instrument d'étalonnage est donc satisfaisant puisqu'il permet d'effectuer des déterminations d'activité avec une précision allant de 1,2 pour cent dans le cas général à 3 pour cent dans les conditions les plus défavorables.

X

COMPARAISONS INTERNATIONALES

Il nous paraît utile de reproduire ci-après les intercomparaisons de mesure d'activité effectuées entre :

- le C.E.A. - Section Mesures (équipé du compteur 4π GM),
- le National Physical Laboratory (Grande-Bretagne),
- le Max Planck Institut de Göttingen (Allemagne Fédérale).

Ces intercomparaisons sont résumées dans le tableau n° XI.

Tableau n° XI

Date	Isotope	Mesure CEA 4π GM	Mesure autre Laboratoire	Différence
12. 12. 1955	^{131}I	25,9 $\mu\text{c/g} \pm 4 \%$	25,1 $\mu\text{c/g} \pm 5 \%$ (1)	+ 3,1 %
12. 12. 1955	^{131}I	1,014 Mc/g $\pm 4 \%$	1,00 Mc/g $\pm 5 \%$ (1)	+ 1,4 %
20. 1. 1956	^{198}Au	26,5 $\mu\text{c/g} \pm 3 \%$	25,6 $\mu\text{c/g} \pm 3 \%$ (1)	+ 3,4 %
4. 7. 1956	^{24}Na	2,56 $\mu\text{c/g} \pm 2 \%$	2,50 $\mu\text{c/g} \pm 3 \%$ (1)	+ 2,4 %
4. 7. 1956	^{24}Na	2,57 $\mu\text{c/g} \pm 2 \%$	2,50 $\mu\text{c/g} \pm 3 \%$ (1)	+ 2,8 %
12. 12. 1956	^{32}P	0,99 mc/g $\pm 3 \%$	0,96 mc/g $\pm 3 \%$ (1)	+ 3 %
1. 4. 1958	^{35}S	9,9 $\mu\text{c/g} \pm 3 \%$	9,85 $\mu\text{c/g} \pm 2 \%$ (2)	+ 0,5 %
21. 11. 1958	^{198}Au	1,35.10 ⁶ dps/g $\pm 3 \%$	1,33.10 ⁶ dps/g $\pm 0,8 \%$ (3)	+ 1,5 %
"	"	" "	1,34.10 ⁶ dps/g $\pm 2 \%$ (4)	+ 0,8 %

(1) : NPL Grande-Bretagne ; (2) : MPI Allemagne Fédérale ; (3) : NBS USA ; (4) : AECL Canada.

Deux remarques s'imposent :

1/ Tous les résultats obtenus à la section Mesures sont en accord avec les mesures effectuées dans les autres laboratoires dans la limite des erreurs prévues.

2/ Cependant, il faut noter que les résultats C.E.A. sont toujours légèrement supérieurs à ceux des autres Laboratoires. Ceci pourrait être dû au fait qu'au NPL, les mesures sont faites avec un 4π proportionnel et au C.E.A. avec un 4π GM, mais le nombre d'intercomparaisons est trop faible encore pour pouvoir à cet égard tirer des conclusions définitives.

XI

CONCLUSION

L'étude dont les résultats viennent d'être exposés a eu pour objet d'élucider aussi complètement que possible le fonctionnement du compteur 4π , de déterminer les limites supérieures des différentes erreurs qui peuvent être commises, et de définir par voie de conséquence les conditions d'emploi les plus rationnelles.

Ces résultats appellent en outre quelques observations : dans la pratique courante, les mesures au compteur 4π peuvent être faites en recueillant sur une voie unique la somme des impulsions des deux demi-compteurs $2\pi 1$ et $2\pi 2$. Mais cette façon d'opérer présente un certain nombre d'inconvénients.

1/ Impossibilité de déterminer expérimentalement :

- la symétrie des deux demi-compteurs,
- la correction d'absorption en fonction du taux de comptage sur les deux voies.

2/ Repérage difficile des défauts de l'appareillage :

- état de surface des cathodes, anode mal tendue,
- métallisation ou graphitage insuffisants,
- parasites électroniques, etc., enfin tout phénomène qui se traduit par une dissymétrie dans le fonctionnement du 4π .

Par conséquent, lorsqu'on dispose d'une électronique associée permettant le comptage séparé sur les deux voies, cette façon d'opérer est de loin supérieure.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] GRINBERG B., LE GALLIC Y. - J. Phys., 1956, 17, n° 3.
- [2] PATE B.O., YAFFE L. - Canad. J. Chem., 1955, 33.
- [3] HAWKINGS R.C., MERRIT W.F., CRAVEN J.F. - NPL - HM Stationery Office, London 1952.
- [4] SELIGER H.H., CAVALLO L. - J. Research N.B.S., 1951, 47, n° 1.
- [5] SELIGER H.H., SCHWEBEL A. - Nucleonics, 1954, juillet.
- [6] PATE B.O., YAFFE L. - Canad. J. Chem., 1955, 33, avril.
- [7] PATE B.O., YAFFE L. - Canad. J. Chem., 1955, 33, février.
- [8] MANFRED (Von), LEISTNER - Z. ang. Physik, 1956, 8, 7.
- [9] SCHAEFER, HARKER - J. Appl. Phys., 1942, 13.
- [10] LANGER L.M. - Rev. sci. Instrument, 1949, 20.
- [11] LE GALLIC Y., THENARD M. - C.R. Acad. Sci., 1957, 244.
- [12] JANNEZ M., LE GALLIC Y., THENARD M. - Rapport C.E.A. n° 914, 1958.
- [13] GRINBERG B., LE GALLIC Y. - Conf. Genève, 15/P/1208, 1958. Rapport C.E.A. n° 979.
- [14] MANN W.B., SELIGER H.H. - J. Research N.B.S., 1953, 50, n° 4.
- [15] SUZOR F., CHARPAK G. - C.R. Acad. Sci., 1950, 231.
- [16] SUZOR F., CHARPAK G. - C.R. Acad. Sci., 1951, 232.
- [17] SUZOR F., CHARPAK G. - C.R. Acad. Sci., 1952, 234.
- [18] FRY L.M., OVERMANN R.T. - AECD-1800, mars 1958

TABLE DES MATIÈRES

	Pages
I - Introduction.....	3
II - Principe des différentes méthodes de mesure des émetteurs β	5
III - Mesure du Taux de désintégration.....	7
IV - Mesure d'activité au compteur 4 Π	21
V - Préparation des sources.....	23
VI - Corrections sur la numération.....	35
VII - Auto-absorption.....	43
VIII - Corrections d'absorption.....	53
IX - Précision.....	59
X - Comparaisons internationales.....	63
XI - Conclusion.....	65
Bibliographie.....	67

DEUXIEME THESE

Propositions données par la Faculté

APPLICATIONS DE LA FLUORESCENCE B.X.

Vu et approuvé :

Paris, le 11 juin 1960,
Le Doyen de la Faculté des Sciences,
J. PERES

Vu
et Permis d'imprimer :
Le Recteur de l'Académie
de Paris,
Jean SARRAILH

IMP. LOUIS-JEAN — GAP

Depôt légal n° 178-1960

